

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/EP 99/03007

**Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 1 of first sheet)**

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1.  Claims Nos.: because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
  
2.  Claims Nos.: 14 because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:  
See supplemental sheet additional Matter PCT/ISA/210
  
3.  Claims Nos.: because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

**Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 2 of first sheet)**

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

1.  As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2.  As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3.  As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
  
4.  No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

**Remark on Protest**

- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.  
 No protest accompanied the payment of additional search fees.

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/EP 99/03007

Continuation of Field I.2

Claim No. 14

Insufficiently defined parameters in the equations. In particular, parameter d' which is cited as the "numerical value of the thickness of the (co)polymerizate to be produced" is given without specifying the unit system to be used.

The applicant is therefore advised that Patent Claims or portions of Patent Claims laid to inventions for which no international search report was drafted normally cannot be the subject of an international preliminary examination (PCT Rule 66.1(e)). Similar to the authority entrusted with the task of carrying out the international preliminary examination, the EPO also does not generally carry out a preliminary examination of subject matter for which no search has been conducted. This is also valid in the case when the Patent Claims have been amended after receipt of the international search report (PCT Article 19), or in the case when the applicant submits new Patent Claims pursuant to the procedure in accordance with PCT Chapter II.

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International. Ication No  
PCT/EP 99/03007

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER			
IPC 6	B01J8/24	B01J8/44	C08F2/34
			C08F10/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

**B. FIELDS SEARCHED**

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  
IPC 6 B01J C08F

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

**C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	EP 0 825 204 A (BP CHEMICALS SNC ;BP CHEM INT LTD (GB)) 25 February 1998 (1998-02-25) column 4, line 25 -column 5, line 18 column 6, line 43 - line 55 column 8, line 9 -column 9, line 2 column 12, line 24 - line 47 figure 1 ---	1-3,6, 9-12
Y	EP 0 101 893 A (BASF AG) 7 March 1984 (1984-03-07) the whole document ---	1,2
Y	US 3 829 983 A (WHITE NEWELL J) 20 August 1974 (1974-08-20)	1,3,6, 9-12
A	column 2, line 57 -column 3, line 46 claims 1,5,6; figures 1-3 ---	5
		-/-

Further documents are listed in the continuation of box C.

Patent family members are listed in annex.

\* Special categories of cited documents :

- \*A\* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- \*E\* earlier document but published on or after the international filing date
- \*L\* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- \*O\* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- \*P\* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

\*T\* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

\*X\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

\*Y\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

\*Z\* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

1 October 1999

Date of mailing of the international search report

21.10.99

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl.  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Vlassis, M

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International	ication No
PCT/EP 99/03007	

## C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	DE 44 43 292 A (METALLGESELLSCHAFT AG) 13 June 1996 (1996-06-13) claims 1,5,6; figures 1,3,6 ----	5
A	EP 0 297 794 A (BP CHEM INT LTD) 4 January 1989 (1989-01-04) claim 1; figures 1,2 ----	4
A	EP 0 047 794 A (SAAT & ERNTETECHNIK GMBH) 24 March 1982 (1982-03-24) claims 15,17; figure 1 ----	7

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 99/03007

Patent document cited in search report		Publication date		Patent family member(s)		Publication date
EP 0825204	A	25-02-1998	EP	0824114 A		18-02-1998
EP 0101893	A	07-03-1984	DE	3227932 A		02-02-1984
			JP	59042039 A		08-03-1984
US 3829983	A	20-08-1974		NONE		
DE 4443292	A	13-06-1996		NONE		
EP 0297794	A	04-01-1989	FR	2617411 A	06-01-1989	
			AT	69394 T	15-11-1991	
			AU	604334 B	13-12-1990	
			AU	1846688 A	05-01-1989	
			CA	1333325 A	06-12-1994	
			CN	1033754 A,B	12-07-1989	
			DE	3866171 A	19-12-1991	
			DK	357688 A	31-12-1988	
			EG	18765 A	30-07-1994	
			FI	883138 A,B,	31-12-1988	
			GR	3003115 T	17-02-1993	
			JP	1151933 A	14-06-1989	
			KR	9601414 B	27-01-1996	
			SG	1192 G	20-03-1992	
			US	5213768 A	25-05-1993	
EP 0047794	A	24-03-1982	AT	4027 T	15-07-1983	

C

C

TIN

**VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT  
AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS**

**PCT**

**INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT**

(Artikel 18 sowie Regeln 43 und 44 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts <b>0775/000003</b>	<b>WEITERES VORGEHEN</b> <i>siehe Mitteilung über die Übermittlung des internationalen Recherchenberichts (Formblatt PCT/ISA/220) sowie, soweit zutreffend, nachstehender Punkt 5</i>	
Internationales Aktenzeichen <b>PCT / EP 99/ 03007</b>	Internationales Anmelde datum (Tag/Monat/Jahr) <b>04/05/1999</b>	(Frühestes) Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) <b>15/05/1998</b>
Anmelder <b>ELENAC GMBH et al.</b>		
<p>Dieser internationale Recherchenbericht wurde von der Internationalen Recherchenbehörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 18 übermittelt. Eine Kopie wird dem Internationalen Büro übermittelt.</p> <p>Dieser internationale Recherchenbericht umfaßt insgesamt <b>5</b> Blätter.  <input checked="" type="checkbox"/> Darüber hinaus liegt ihm jeweils eine Kopie der in diesem Bericht genannten Unterlagen zum Stand der Technik bei.</p>		
<p><b>1. Grundlage des Berichts</b></p> <p>a. Hinsichtlich der Sprache ist die internationale Recherche auf der Grundlage der internationalen Anmeldung in der Sprache durchgeführt worden, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.</p> <p><input type="checkbox"/> Die internationale Recherche ist auf der Grundlage einer bei der Behörde eingereichten Übersetzung der internationalen Anmeldung (Regel 23.1 b)) durchgeführt worden.</p> <p>b. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz ist die internationale Recherche auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das</p> <p><input type="checkbox"/> in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.</p> <p><input type="checkbox"/> zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.</p> <p><input type="checkbox"/> bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.</p> <p><input type="checkbox"/> bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.</p> <p><input type="checkbox"/> Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.</p> <p><input type="checkbox"/> Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfaßten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.</p> <p>2. <input checked="" type="checkbox"/> Bestimmte Ansprüche haben sich als nicht recherchierbar erwiesen (siehe Feld I).</p> <p>3. <input type="checkbox"/> Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung (siehe Feld II).</p> <p>4. Hinsichtlich der Bezeichnung der Erfindung</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.</p> <p><input type="checkbox"/> wurde der Wortlaut von der Behörde wie folgt festgesetzt:</p> <p>5. Hinsichtlich der Zusammenfassung</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.</p> <p><input type="checkbox"/> wurde der Wortlaut nach Regel 38.2b) in der in Feld III angegebenen Fassung von der Behörde festgesetzt. Der Anmelder kann der Behörde innerhalb eines Monats nach dem Datum der Absendung dieses internationalen Recherchenberichts eine Stellungnahme vorlegen.</p> <p>6. Folgende Abbildung der Zeichnungen ist mit der Zusammenfassung zu veröffentlichen: Abb. Nr. <b>1</b></p> <p><input type="checkbox"/> wie vom Anmelder vorgeschlagen</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> weil der Anmelder selbst keine Abbildung vorgeschlagen hat.</p> <p><input type="checkbox"/> weil diese Abbildung die Erfindung besser kennzeichnet.</p> <p><input type="checkbox"/> keine der Abb.</p>		



**INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT**Internationales Aktenzeichen  
PCT/EP 99/03007**Feld I Bemerkungen zu den Ansprüchen, die sich als nicht recherchierbar erwiesen haben (Fortsetzung von Punkt 2 auf Blatt 1)**

Gemäß Artikel 17(2)a wurde aus folgenden Gründen für bestimmte Ansprüche kein Recherchenbericht erstellt:

1.  Ansprüche Nr. \_\_\_\_\_ weil sie sich auf Gegenstände beziehen, zu deren Recherche die Behörde nicht verpflichtet ist, nämlich
  
2.  Ansprüche Nr. 14 \_\_\_\_\_ weil sie sich auf Teile der internationalen Anmeldung beziehen, die den vorgeschriebenen Anforderungen so wenig entsprechen, daß eine sinnvolle internationale Recherche nicht durchgeführt werden kann, nämlich  
siehe Zusatzblatt WEITERE ANGABEN PCT/ISA/210
  
3.  Ansprüche Nr. \_\_\_\_\_ weil es sich dabei um abhängige Ansprüche handelt, die nicht entsprechend Satz 2 und 3 der Regel 6.4 a) abgefaßt sind.

**Feld II Bemerkungen bei mangelnder Einheitlichkeit der Erfindung (Fortsetzung von Punkt 3 auf Blatt 1)**

Die internationale Recherchenbehörde hat festgestellt, daß diese internationale Anmeldung mehrere Erfindungen enthält:

1.  Da der Anmelder alle erforderlichen zusätzlichen Recherchengebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht auf alle recherchierbaren Ansprüche.
  
2.  Da für alle recherchierbaren Ansprüche die Recherche ohne einen Arbeitsaufwand durchgeführt werden konnte, der eine zusätzliche Recherchengebühr gerechtfertigt hätte, hat die Behörde nicht zur Zahlung einer solchen Gebühr aufgefordert.
  
3.  Da der Anmelder nur einige der erforderlichen zusätzlichen Recherchengebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht nur auf die Ansprüche, für die Gebühren entrichtet worden sind, nämlich auf die Ansprüche Nr. \_\_\_\_\_.
  
4.  Der Anmelder hat die erforderlichen zusätzlichen Recherchengebühren nicht rechtzeitig entrichtet. Der internationale Recherchenbericht beschränkt sich daher auf die in den Ansprüchen zuerst erwähnte Erfindung; diese ist in folgenden Ansprüchen erfaßt:

**Bemerkungen hinsichtlich eines Widerspruchs**

- Die zusätzlichen Gebühren wurden vom Anmelder unter Widerspruch gezahlt.  
 Die Zahlung zusätzlicher Recherchengebühren erfolgte ohne Widerspruch.

WEITERE ANGABEN	PCT/ISA/ 210
<p>Fortsetzung von Feld I.2</p> <p>Ansprüche Nr.: 14</p> <p>Unausreichend definierter Parameter in Gleichungen. Insbesondere ist der Parameter d' als "Zahlenwert der Dichte des herzustellenden (Co)Polymerisats" angegeben ohne Angabe des zu gebrauchenden Einheitssystems festzusetzen.</p> <p>Der Anmelder wird darauf hingewiesen, daß Patentansprüche, oder Teile von Patentansprüchen, auf Erfindungen, für die kein internationaler Recherchenbericht erstellt wurde, normalerweise nicht Gegenstand einer internationalen vorläufigen Prüfung sein können (Regel 66.1(e) PCT). In seiner Eigenschaft als mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragte Behörde wird das EPA also in der Regel keine vorläufige Prüfung für Gegenstände durchführen, zu denen keine Recherche vorliegt. Dies gilt auch für den Fall, daß die Patentansprüche nach Erhalt des internationalen Recherchenberichtes geändert wurden (Art. 19 PCT), oder für den Fall, daß der Anmelder im Zuge des Verfahrens gemäß Kapitel II PCT neue Patentanprüche vorlegt.</p>	

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

International. Kennzeichen  
PCT/EP 99/03007

<b>A. KLASIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES</b> IPK 6 B01J8/24 B01J8/44 C08F2/34 C08F10/00			
Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK			
<b>B. RECHERCHIERTE GEBIETE</b> Recherchierte Mindestpräststoff (Klassifikationssystem und Klassifikationsymbole) IPK 6 B01J C08F			
Recherchierte aber nicht zum Mindestpräststoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen			
Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)			
<b>C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN</b>			
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.	
Y	EP 0 825 204 A (BP CHEMICALS SNC ;BP CHEM INT LTD (GB)) 25. Februar 1998 (1998-02-25) Spalte 4, Zeile 25 -Spalte 5, Zeile 18 Spalte 6, Zeile 43 - Zeile 55 Spalte 8, Zeile 9 -Spalte 9, Zeile 2 Spalte 12, Zeile 24 - Zeile 47 Abbildung 1 ---	1-3,6, 9-12	
Y	EP 0 101 893 A (BASF AG) 7. März 1984 (1984-03-07) das ganze Dokument ---	1,2	
Y	US 3 829 983 A (WHITE NEWELL J) 20. August 1974 (1974-08-20) Spalte 2, Zeile 57 -Spalte 3, Zeile 46 Ansprüche 1,5,6; Abbildungen 1-3 ---	1,3,6, 9-12	
A	Ansprüche 1-3 ---	5	
-/-			
<input checked="" type="checkbox"/> Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen		<input checked="" type="checkbox"/> Siehe Anhang Patentfamilie	
<ul style="list-style-type: none"> <li>* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :</li> <li>* A* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist</li> <li>* E* älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist</li> <li>* L* Veröffentlichung, die gezeigt ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)</li> <li>* O* Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht</li> <li>* P* Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist</li> </ul>		<ul style="list-style-type: none"> <li>* T* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist</li> <li>* X* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erforderlicher Tätigkeit beruhend betrachtet werden</li> <li>* V* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erforderlicher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist</li> <li>* a* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist</li> </ul>	
Datum des Abschlusses der internationalen Recherche  1. Oktober 1999		Absendedatum des internationalen Recherchenberichts  21.10.99	
Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5816 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl. Fax: (+31-70) 340-3016		Bevollmächtigter Bediensteter  Vlassis, M	

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationale Patentzeichen

PCT/EP 99/03007

## C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	DE 44 43 292 A (METALLGESELLSCHAFT AG) 13. Juni 1996 (1996-06-13) Ansprüche 1,5,6; Abbildungen 1,3,6 ----	5
A	EP 0 297 794 A (BP CHEM INT LTD) 4. Januar 1989 (1989-01-04) Anspruch 1; Abbildungen 1,2 ----	4
A	EP 0 047 794 A (SAAT & ERNTETECHNIK GMBH) 24. März 1982 (1982-03-24) Ansprüche 15,17; Abbildung 1 ----	7

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Anzeichen  
PCT/EP 99/03007

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument		Datum der Veröffentlichung		Mitglied(er) der Patentfamilie		Datum der Veröffentlichung
EP 0825204	A	25-02-1998	EP	0824114 A		18-02-1998
EP 0101893	A	07-03-1984	DE	3227932 A		02-02-1984
			JP	59042039 A		08-03-1984
US 3829983	A	20-08-1974		KEINE		
DE 4443292	A	13-06-1996		KEINE		
EP 0297794	A	04-01-1989	FR	2617411 A	06-01-1989	
			AT	69394 T	15-11-1991	
			AU	604334 B	13-12-1990	
			AU	1846688 A	05-01-1989	
			CA	1333325 A	06-12-1994	
			CN	1033754 A,B	12-07-1989	
			DE	3866171 A	19-12-1991	
			DK	357688 A	31-12-1988	
			EG	18765 A	30-07-1994	
			FI	883138 A,B,	31-12-1988	
			GR	3003115 T	17-02-1993	
			JP	1151933 A	14-06-1989	
			KR	9601414 B	27-01-1996	
			SG	1192 G	20-03-1992	
			US	5213768 A	25-05-1993	
EP 0047794	A	24-03-1982	AT	4027 T	15-07-1983	

Q

C

09700365  
Translation  
17x1

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

1764 6

Applicant's or agent's file reference 0775/000003	<b>FOR FURTHER ACTION</b>	See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)
International application No. PCT/EP99/03007	International filing date ( <i>day/month/year</i> ) 04 May 1999 (04.05.99)	Priority date ( <i>day/month/year</i> ) 15 May 1998 (15.05.98)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC B01J 8/24, 8/44, C08F 2/34, 10/00		
Applicant ELENAC GMBH		

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.
2. This REPORT consists of a total of 4 sheets, including this cover sheet.

This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).

These annexes consist of a total of 3 sheets.

3. This report contains indications relating to the following items:

- I  Basis of the report
- II  Priority
- III  Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability
- IV  Lack of unity of invention
- V  Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement
- VI  Certain documents cited
- VII  Certain defects in the international application
- VIII  Certain observations on the international application

SEARCHED  
INDEXED  
FILED  
1764 6

Date of submission of the demand 18 November 1999 (18.11.99)	Date of completion of this report 01 September 2000 (01.09.2000)
Name and mailing address of the IPEA/EP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.



## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP99/03007

## I. Basis of the report

1. This report has been drawn on the basis of (Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to the report since they do not contain amendments.):

- the international application as originally filed.
- the description, pages 1 - 6, as originally filed,  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand,  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_,  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- the claims, Nos. \_\_\_\_\_, as originally filed,  
Nos. \_\_\_\_\_, as amended under Article 19,  
Nos. \_\_\_\_\_, filed with the demand,  
Nos. 1 - 15, filed with the letter of 19 May 2000 (19.05.2000),  
Nos. \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- the drawings, sheets/fig 1, as originally filed,  
sheets/fig \_\_\_\_\_, filed with the demand,  
sheets/fig \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_,  
sheets/fig \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_

2. The amendments have resulted in the cancellation of:

- the description, pages \_\_\_\_\_
- the claims, Nos. \_\_\_\_\_
- the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_

3.  This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).

4. Additional observations, if necessary:



## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No. PCT/EP 99/03007
--

## V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

## 1. Statement

Novelty (N)	Claims	1-15	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims		YES
	Claims	1-15	NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-15	YES
	Claims		NO

## 2. Citations and explanations

## 1. Novelty

D1 = EP-A-0 101 893 describes (see Figures 1 and 2; page 4, lines 14-16; page 1, lines 10-19; page 2, line 9 to page 3, line 3, and page 5, lines 24-26) a reactor, which is cylindrical and has a gas inlet without a reactor floor. Two cooling devices inside the reactor and a gas circulation system are also present. A compressor must be present to recirculate the reaction gas (cf. page 5, lines 24-26). A dust separator is described as being present in the gas circulation system (cf. page 5, line 25) having the features of a cyclone (cf. page 5, line 25). The lower conical (3) part with an aperture angle of 20 to 60° introduces gas in the direction of flow as seen in the flow converter of the present Claim 4.

The introduction of a disclaimer in Claim 1 (namely, that the gas phase fluid bed reactor has no heat exchanger in the reaction chamber) establishes the novelty of the claimed subject matter over D1.

## 2. Inventive Step

The disclaimer introduced represents an obvious



**INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT**

International application No.

PCT/EP 99/03007

change to the prior art that cannot be seen as involving an inventive step. In fact, a person skilled in the art can move the heat exchanger outside the reactor chamber without being inventive with respect to D1.

The features of the dependent claims are also common within prior art.

The subject matter claimed does not satisfy the requirements of PCT Article 33(3).



We claim:

- 5 1. A gas-phase fluidized-bed reactor for polymerizing ethylenically unsaturated monomers, comprising a reactor chamber (1) in the form of a vertical tube, a circulation gas line (3), a circulation gas compressor (4) and a cooling device (5), wherein, in the region of transition of the reaction gas from the circulation gas line into the reactor chamber and in the lower section of the reactor chamber itself, there is either no gas distributor plate at all or only a gas distributor plate the total surface area of whose gas orifices is more than 20% of the total surface area of said gas distributor plate.
- 10 2. A reactor as claimed in claim 1, wherein there is no gas distributor plate in the region of transition of the reaction gas from the circulation gas line into the reactor chamber or in the lower section of the reactor chamber itself.
- 15 3. A reactor as claimed in claim 1, wherein, in the region of transition of the reaction gas from the circulation gas line into the reactor chamber or in the lower section of the reactor chamber itself, there is a gas distributor plate the total surface area of whose gas orifices is more than 90% of the total surface area of said gas distributor plate.
- 20 4. A reactor as claimed in any of claims 1 to 3, wherein flow reshapers are sited in the region of transition of the reaction gas from the circulation gas line into the reactor chamber in order to reshape the flow pulse of the incoming gas, said reshapers being arranged so as to bring about substantially homogeneous introduction of the gas flow into the fluidized bed.
- 25 5. A reactor as claimed in any of claims 1 to 3, wherein, in the region of transition of the reaction gas from the circulation gas line into the reactor chamber, for reshaping the flow pulse of the incoming gas, there is sited a wide-mesh grid on which balls are fixed in such number, size and distribution as to bring about substantially homogeneous introduction of the gas flow into the fluidized bed.
- 30 6. A reactor as claimed in any of claims 1 to 5, wherein the internal diameter of the reactor chamber (1) is more than

REPLACED BY  
ART 34 AMDT

Fig.



0.5 m.

7. A reactor as claimed in any of claims 1 to 6, wherein, to prevent the penetration of polymer particles into the circulation gas line when the compressor is switched off, a closable flap is sited in the region of transition from the circulation gas line into the lower section of the reactor chamber.
- 10 8. A reactor as claimed in claim 7, wherein the closable flap is provided with uniformly distributed holes having a diameter of between 1 and 7 mm.
- 15 9. A reactor as claimed in any of claims 1 to 8, wherein a calming zone (2) follows the upper section of the reactor chamber (1).
- 20 10. A reactor as claimed in any of claims 1 to 9, wherein between the reactor chamber (1) and the units of the circulation gas line there is sited a cyclone to separate off polymer and catalyst particles from the circulation gas.
- 25 11. A process for polymerizing ethylene or for copolymerizing ethylene with C<sub>3</sub>- to C<sub>8</sub>-a-olefins, wherein the (co)polymerization is conducted in a reactor as claimed in any of claims 1 to 10.
- 30 12. A process as claimed in claim 11, wherein polymerization is conducted in the presence of condensed monomers and/or condensed hydrocarbons.
- 35 13. A process as claimed in claim 11, wherein a mixture comprising gaseous and liquid monomers is fed into the reactor chamber.
- 40 14. A process as claimed in any of claims 11 to 13, wherein to prepare a (co)polymer of a preselected density d the (co)polymerization is conducted at a temperature situated within a range bounded by an upper limit of equation (I)

45

$$T_H = 171 + \frac{6d'}{0.84-d'} \quad (I)$$

13/11/00  
13/11/00  
13/11/00



9

and a lower limit of equation (II)

$$T_L = 173 + \frac{7.3d'}{0.837-d'} \quad (II)$$

5

where

10  $T_H$  is the highest reaction temperature in °C

$T_L$  is the lowest reaction temperature in °C

15  $d'$  is the numerical value of the density ( $d$ ) of the  
(co)polymer to be prepared.

15. A process for preparing EPDM, wherein the copolymerization is  
conducted in a reactor as claimed in any of claims 1 to 10.

20

25

30

35

40

45

REPLACED BY  
ART 34 AMEND



# VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

## PCT

### INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts 0775/000003	<b>WEITERES VORGEHEN</b> siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsbericht (Formblatt PCT/IPEA/416)	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP99/03007	Internationales Anmelde datum (Tag/Monat/Jahr) 04/05/1999	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Tag) 15/05/1998
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK B01J8/24		
Anmelder ELENAC GMBH et al.		

1. Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationale vorläufigen Prüfung beauftragte Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.
2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 4 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.  ☒ Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).  Diese Anlagen umfassen insgesamt 3 Blätter.
3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:  I <input checked="" type="checkbox"/> Grundlage des Berichts II <input type="checkbox"/> Priorität III <input type="checkbox"/> Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erforderliche Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit IV <input type="checkbox"/> Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung V <input checked="" type="checkbox"/> Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erforderlichen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung VI <input type="checkbox"/> Bestimmte angeführte Unterlagen VII <input type="checkbox"/> Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung VIII <input type="checkbox"/> Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags 18/11/1999	Datum der Fertigstellung dieses Berichts 01.09.2000
Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde:  Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter  Rumbo, A  Tel. Nr. +49 89 2399 8407





# INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP99/03007

## I. Grundlage des Berichts

1. Dieser Bericht wurde erstellt auf der Grundlage (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigefügt, weil sie keine Änderungen enthalten.*):

### Beschreibung, Seiten:

1-6                    ursprüngliche Fassung

### Patentansprüche, Nr.:

1-15                    eingegangen am                    19/05/2000 mit Schreiben vom            19/05/2000

### Zeichnungen, Blätter:

1                    ursprüngliche Fassung

2. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

Beschreibung,                    Seiten:  
 Ansprüche,                    Nr.:  
 Zeichnungen,                    Blatt:

3.  Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)):

4. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

## V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

### 1. Feststellung

Neuheit (N)	Ja: Ansprüche	1-15
	Nein: Ansprüche	
Erfinderische Tätigkeit (ET)	Ja: Ansprüche	
	Nein: Ansprüche	1-15
Gewerbliche Anwendbarkeit (GA)	Ja: Ansprüche	1-15
	Nein: Ansprüche	



**INTERNATIONALER VORLÄUFIGER  
PRÜFUNGSBERICHT**

Internationales Aktenzeichen PCT/EP99/03007

---

**2. Unterlagen und Erklärungen**

**siehe Beiblatt**



## 1. NEUHEIT

D1=EP-A-0 101 893 beschreibt (siehe: Abbildungen 1 und 2; Seite 4, Zeilen 14-16; Seite 1, Zeilen 10-19; Seite 2, Zeile 9- Seite 3, Zeile 3 und Seite 5, Teilen 24-26) einen Reaktor, welcher zylindrisch ist und eine Gaseinführung ohne Reaktorboden aufweist. **Zwei Kühleinrichtungen innerhalb des Reaktors** und einen Gaskreislauf sind vorhanden. Es ist unabdingbar, daß dabei einen Kompressor für die Rückführung des Reaktionsgases (vgl. Seite 5, Zeilen 24-26) vorhanden sein muß. In Gaskreislauf ist ein Fliehkraftabscheider (vgl. Seite 5, Teile 25) beschrieben, welcher die Merkmale eines Zyklons aufweist. Das konische Unterteil (3) mit einem Öffnungswinkel vom 20 bis 60° dient das Gas mit gezielter Gasgleichrichtung einzuführen im Sinne der Strömungsumformer des vorliegenden Anspruchs 4.

Die Neuheit des beanspruchten Gegenstandes gegenüber D1 ist durch die Einführung eines Disclaimers (der Gasenphasenwirbelschichtreaktor besitzt keine Wärmetauscher im Reaktorraum) in Wortlaut des Anspruchs 1 hergestellt.

## 2. ERFINDERISCHE TÄTIGKEIT

Das eingeführte Disclaimer stellt eine offensichtliche Änderung des Standes der Technik, welche nicht als erforderlich betrachtet werden kann. In der Tat kann die Fachperson in einer naheliegenden Weise die Wärmetauscher außerhalb des Reaktorsraums verlegen ohne erforderliches Zutun gegenüber D1.

Die Merkmale der abhängigen Ansprüche sind auch geläufige Merkmale des Standes der Technik.

Der beanspruchte Gegenstand erfüllt den Erfordernissen der Artikel 33(3) PCT nicht.



0775/00003

### Patentansprüche

1. Gasphasenwirbelschichtreaktor zur Polymerisation ethylenisch ungesättigter Monomerer, umfassend einen Reaktorraum (1) in Form eines vertikalen Rohres, eine Kreisgasleitung (3), einen Kreisgaskompressor (4) und eine Kühleinrichtung (5), wobei der Kreisgaskompressor (4) und die Kühleinrichtung (5) in der Kreisgasleitung (3) angebracht sind, dadurch gekennzeichnet,  
daß im Bereich des Übertritts des Reaktionsgases von der Kreisgasleitung in den Reaktorraum und im unteren Teil des Reaktorraumes selbst entweder überhaupt kein Gasverteilerboden oder nur ein Gasverteilerboden, dessen Gesamtfläche der Gasdurchlaßöffnungen mehr als 20 % der Gesamtfläche dieses Gasverteilerbodens beträgt, vorhanden ist und der Gasphasenwirbelschichtreaktor keine innenliegenden Wärmeaustauscher im Reaktorraum (1) besitzt.
  2. Gasphasenwirbelschichtreaktor nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß im Bereich des Übertritts des Reaktionsgases von der Kreisgasleitung in den Reaktorraum und im unteren Teil des Reaktorraumes selbst kein Gasverteilerboden vorhanden ist.
  3. Gasphasenwirbelschichtreaktor nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß im Bereich des Übertritts des Reaktionsgases von der Kreisgasleitung in den Reaktorraum oder im unteren Teil des Reaktorraumes selbst ein Gasverteilerboden, dessen Gesamtfläche der Gasdurchlaßöffnungen mehr als 90 % der Gesamtfläche dieses Gasverteilerbodens beträgt, vorhanden ist.
  4. Gasphasenwirbelschichtreaktor nach den Ansprüchen 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß im Bereich des Übertritts des Reaktionsgases von der Kreisgasleitung in den Reaktorraum zur Umformung des Strömungsimpulses des eintretenden Gases Strömungsumformer angebracht sind, die so angeordnet sind, daß eine weitgehend homogene Einleitung der Gasströmung in die Wirbelschicht erzielt wird.

45

**GEÄNDERTES BLATT**

### zeichen



0775/00003

## 8

5. Gasphasenwirbelschichtreaktor nach den Ansprüchen 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß im Bereich des Übertritts des Reaktionsgases von der Kreisleitung in den Reaktorraum zur Umformung des Strömungsimpulses des eintretenden Gases ein grobmaschiges Netz angebracht ist, auf welchem Kugeln in solcher Zahl, Größe und Verteilung fixiert sind, daß eine weitgehend homogene Einleitung der Gasströmung in die Wirbelschicht erzielt wird.
- 10 6. Gasphasenwirbelschichtreaktor nach den Ansprüchen 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß der Innendurchmesser des Reaktorraumes (1) mehr als 0,5 m beträgt.
- 15 7. Gasphasenwirbelschichtreaktor nach den Ansprüchen 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß zur Verhinderung des Eindringens vom Polymerisatpartikeln in die Kreisgasleitung bei abgeschaltetem Kompressor im Bereich des Übergangs von der Kreisleitung in den unteren Teil des Reaktorraumes eine verschließbare Klappe angebracht ist.
- 20 8. Gasphasenwirbelschichtreaktor nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, daß die verschließbare Klappe mit gleichmäßig verteilten Löchern mit einem Durchmesser zwischen 1 und 7 mm versehen ist.
- 25 9. Gasphasenwirbelschichtreaktor nach den Ansprüchen 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, daß an dem oberen Teil des Reaktorraumes (1) eine Beruhigungszone (2) anschließt.
- 30 10. Gasphasenwirbelschichtreaktor nach den Ansprüchen 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, daß zwischen dem Reaktorraum (1) und den Aggregaten der Kreisgasleitung ein Zyklon zur Abtrennung von Polymerisat- und Katalysatorpartikeln aus dem Kreisgas angebracht ist.
- 35 11. Verfahren zur Polymerisation von Ethylen oder zur Copolymerisation von Ethylen mit C<sub>3</sub>- bis C<sub>8</sub>- $\alpha$ -Olefinen, dadurch gekennzeichnet, daß die (Co-)polymerisation in einem Gasphasenwirbelschichtreaktor gemäß den Ansprüchen 1 bis 10 durchgeführt wird.
- 40 12. Verfahren nach Anspruch 11, dadurch gekennzeichnet, daß die Polymerisation in Gegenwart kondensierter Monomeren und/oder kondensierter Kohlenwasserstoffe durchgeführt wird.

45

GEÄNDERTES BLATT



• 0775/00003

9

13. Verfahren nach Anspruch 11, dadurch gekennzeichnet, daß man ein Gemisch enthaltend gasförmige und flüssige Monomere in den Reaktorraum einspeist.

14. Verfahren nach den Ansprüchen 11 bis 13, dadurch gekennzeichnet, daß man zur Herstellung eines (Co)Polymerisats einer vorgewählten Dichte  $d$  die (Co)Polymerisation bei einer Temperatur durchführt, welche in einem Bereich liegt, der von einer oberen Umhüllenden der Gleichung (I)

10

$$T_H = 171 + \frac{6d'}{0,84 \cdot d'} \quad (I)$$

15

und einen unteren Umhüllenden der Gleichung (II)

$$T_N = 173 + \frac{7,3d'}{0,837 \cdot d'} \quad (II)$$

20

begrenzt wird, worin die Variablen die folgende Bedeutung haben:

25

$T_H$  höchste Reaktionstemperatur in °C

$T_N$  niedrigste Reaktionstemperatur in °C

30

$d'$  Zahlenwert der Dichte ( $d$ ) [ $\text{g}/\text{cm}^3$ ] des herzustellenden (Co)Polymerisats.

35

15. Verfahren zur Herstellung von EPDM, dadurch gekennzeichnet, daß die Copolymerisation in einem Reaktor gemäß den Ansprüchen 1 bis 10 durchgeführt wird.

35

40

45

GEÄNDERTES BLATT



**VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT  
AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS**

Absender: INTERNATIONALE RECHERCHENBEHÖRDE

**PCT**

An <b>BASF AKTIENGESELLSCHAFT</b> z.H. Meyer, Thomas D-67056 Ludwigshafen GERMANY	<b>Patente, Marken u. Lizenzien</b> <b>22. OKT. 1999</b>
---	---

MITTEILUNG ÜBER DIE ÜBERMITTLUNG DES  
INTERNATIONALEN RECHERCHENBERICHTS  
ODER DER ERKLÄRUNG

(Regel 44.1 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts <b>0775/000003</b>	Absendedatum (Tag/Monat/Jahr) <b>21/10/1999</b>
Internationales Aktenzeichen <b>PCT/EP 99/03007</b>	WEITERES VORGEHEN      siehe Punkte 1 und 4 unten Internationales Anmelde datum (Tag/Monat/Jahr) <b>04/05/1999</b>
Anmelder <b>ELENAC GMBH et al.</b>	

1.  Dem Anmelder wird mitgeteilt, daß der internationale Recherchenbericht erstellt wurde und ihm hiermit übermittelt wird.

**Einreichung von Änderungen und einer Erklärung nach Artikel 19:**

Der Anmelder kann auf eigenen Wunsch die Ansprüche der internationalen Anmeldung ändern (siehe Regel 46):

**Bis wann sind Änderungen einzureichen?**

Die Frist zur Einreichung solcher Änderungen beträgt üblicherweise zwei Monate ab der Übermittlung des internationalen Recherchenberichts; weitere Einzelheiten sind den Anmerkungen auf dem Beiblatt zu entnehmen.

**Wo sind Änderungen einzureichen?**

Unmittelbar beim Internationalen Büro der WIPO, 34, CHEMIN des Colombettes, CH-1211 Genf 20,  
Telefaxnr.: (41-22) 740.14.35

Nähere Hinweise sind den Anmerkungen auf dem Beiblatt zu entnehmen.

2.  Dem Anmelder wird mitgeteilt, daß **kein** internationaler Recherchenbericht erstellt wird und daß ihm hiermit die Erklärung nach Artikel 17(2)a) übermittelt wird.
3.  **Hinsichtlich des Widerspruchs** gegen die Errichtung einer zusätzlichen Gebühr (zusätzlicher Gebühren) nach Regel 40.2 wird dem Anmelder mitgeteilt, daß
- der Widerspruch und die Entscheidung hierüber zusammen mit seinem Antrag auf Übermittlung des Wortlauts sowohl des Widerspruchs als auch der Entscheidung hierüber an die Bestimmungsämter dem Internationalen Büro übermittelt werden sind.
  - noch keine Entscheidung über den Widerspruch vorliegt; der Anmelder wird benachrichtigt, sobald eine Entscheidung getroffen wurde.

4. **Weiteres Vorgehen:** Der Anmelder wird auf folgendes aufmerksam gemacht:

Kurz nach Ablauf von **18 Monaten** seit dem Prioritätsdatum wird die internationale Anmeldung vom Internationalen Büro veröffentlicht. Will der Anmelder die Veröffentlichung verhindern oder auf einen späteren Zeitpunkt verschieben, so muß gemäß Regel 90<sup>a</sup> bzw. 90<sup>b</sup> vor Abschluß der technischen Vorbereitungen für die internationale Veröffentlichung eine Erklärung über die Zurücknahme der internationalen Anmeldung oder des Prioritätsanspruchs beim Internationalen Büro eingehen.

Innerhalb von **19 Monaten** seit dem Prioritätsdatum ist ein Antrag auf internationale vorläufige Prüfung einzureichen, wenn der Anmelder den Eintritt in die nationale Phase bis zu 30 Monaten seit dem Prioritätsdatum (in manchen Ämtern sogar noch länger) verschieben möchte.

Innerhalb von **20 Monaten** seit dem Prioritätsdatum muß der Anmelder die für den Eintritt in die nationale Phase vorgeschriebenen Handlungen vor allen Bestimmungsämttern vornehmen, die nicht innerhalb von 19 Monaten seit dem Prioritätsdatum in der Anmeldung oder einer nachträglichen Auswahlserklärung ausgewählt wurden oder nicht ausgewählt werden konnten, da für sie Kapitel II des Vertrages nicht verbindlich ist.

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde

  
**Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2**  
NL-2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

**Trudy Thoen-de Jong**





## ANMERKUNGEN ZU FORMBLATT PCT/ISA/220

Diese Anmerkungen sollen grundlegende Hinweise zur Einreichung von Änderungen gemäß Artikel 19 geben. Diesen Anmerkungen liegen die Erfordernisse des Vertrags über die internationale Zusammenarbeit auf dem Gebiet des Patentwesens (PCT), der Ausführungsordnung und der Verwaltungsvorschriften zu diesem Vertrag zugrunde. Bei Abweichungen zwischen diesen Anmerkungen und obengenannten Texten sind letztere maßgebend. Nähere Einzelheiten sind dem PCT-Leitfaden für Anmelder, einer Veröffentlichung der WIPO, zu entnehmen.

Die in diesen Anmerkungen verwendeten Begriffe "Artikel", "Regel" und "Abschnitt" beziehen sich jeweils auf die Bestimmungen des PCT-Vertrags, der PCT-Ausführungsordnung bzw. der PCT-Verwaltungsvorschriften.

### HINWEISE ZU ÄNDERUNGEN GEMÄSS ARTIKEL 19

Nach Erhalt des internationalen Recherchenberichts hat der Anmelder die Möglichkeit, einmal die Ansprüche der internationalen Anmeldung zu ändern. Es ist jedoch zu betonen, daß, da alle Teile der internationalen Anmeldung (Ansprüche, Beschreibung und Zeichnungen) während des internationalen vorläufigen Prüfungsverfahrens geändert werden können, normalerweise keine Notwendigkeit besteht, Änderungen der Ansprüche nach Artikel 19 einzureichen, außer wenn der Anmelder z.B. zum Zwecke eines vorläufigen Schutzes die Veröffentlichung dieser Ansprüche wünscht oder ein anderer Grund für eine Änderung der Ansprüche vor ihrer internationalen Veröffentlichung vorliegt. Weiterhin ist zu beachten, daß ein vorläufiger Schutz nur in einigen Staaten erhältlich ist.

#### **Welche Teile der Internationalen Anmeldung können geändert werden?**

Im Rahmen von Artikel 19 können nur die Ansprüche geändert werden.

In der internationalen Phase können die Ansprüche auch nach Artikel 34 vor der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde geändert (oder nochmals geändert) werden. Die Beschreibung und die Zeichnungen können nur nach Artikel 34 vor der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde geändert werden.

Beim Eintritt in die nationale Phase können alle Teile der internationalen Anmeldung nach Artikel 28 oder gegebenenfalls Artikel 41 geändert werden.

#### **Bis wann sind Änderungen einzureichen?**

Innerhalb von zwei Monaten ab der Übermittlung des internationalen Recherchenberichts oder innerhalb von sechzehn Monaten ab dem Prioritätsdatum, je nachdem, welche Frist später abläuft. Die Änderungen gelten jedoch als rechtzeitig eingereicht, wenn sie dem Internationalen Büro nach Ablauf der maßgebenden Frist, aber noch vor Abschluß der technischen Vorbereitungen für die internationale Veröffentlichung (Regel 46.1) zugehen.

#### **Wo sind Änderungen nicht einzureichen?**

Die Änderungen können nur beim Internationalen Büro, nicht aber beim Anmeldeamt oder der Internationalen Recherchenbehörde eingereicht werden (Regel 46.2).

Falls ein Antrag auf internationale vorläufige Prüfung eingereicht wurde/wird, siehe unten.

#### **In welcher Form können Änderungen erfolgen?**

Eine Änderung kann erfolgen durch Streichung eines oder mehrerer ganzer Ansprüche, durch Hinzufügung eines oder mehrerer neuer Ansprüche oder durch Änderung des Wortlauts eines oder mehrerer Ansprüche in der eingereichten Fassung.

Für jedes Anspruchsblatt, das sich aufgrund einer oder mehrerer Änderungen von dem ursprünglich eingereichten Blatt unterscheidet, ist ein Ersatzblatt einzureichen.

Alle Ansprüche, die auf einem Ersatzblatt erscheinen, sind mit arabischen Ziffern zu numerieren. Wird ein Anspruch gestrichen, so brauchen die anderen Ansprüche nicht neu nummeriert zu werden. Im Fall einer Neunumerierung sind die Ansprüche fortlaufend zu nummerieren (Verwaltungsvorschriften, Abschnitt 205 b)).

**Die Änderungen sind in der Sprache abzufassen, in der die Internationale Anmeldung veröffentlicht wird.**

#### **Welche Unterlagen sind den Änderungen beizufügen?**

##### **Begleitschreiben (Abschnitt 205 b)):**

Die Änderungen sind mit einem Begleitschreiben einzureichen.

Das Begleitschreiben wird nicht zusammen mit der internationalen Anmeldung und den geänderten Ansprüchen veröffentlicht. Es ist nicht zu verwechseln mit der "Erklärung nach Artikel 19(1)" (siehe unten, "Erklärung nach Artikel 19 (1)").

**Das Begleitschreiben ist nach Wahl des Anmelders in englischer oder französischer Sprache abzufassen. Bei englischsprachigen Internationalen Anmeldungen ist das Begleitschreiben aber ebenfalls in englischer, bei französischsprachigen Internationalen Anmeldungen in französischer Sprache abzufassen.**

## ANMERKUNGEN ZU FORMBLATT PCT/ISA/220 (Fortsetzung)

Im Begleitschreiben sind die Unterschiede zwischen den Ansprüchen in der eingereichten Fassung und den geänderten Ansprüchen anzugeben. So ist insbesondere zu jedem Anspruch in der internationalen Anmeldung anzugeben (gleichlautende Angaben zu verschiedenen Ansprüchen können zusammengefaßt werden), ob

- i) der Anspruch unverändert ist;
- ii) der Anspruch gestrichen worden ist;
- iii) der Anspruch neu ist;
- iv) der Anspruch einen oder mehrere Ansprüche in der eingereichten Fassung ersetzt;
- v) der Anspruch auf die Teilung eines Anspruchs in der eingereichten Fassung zurückzuführen ist.

**Im folgenden sind Beispiele angegeben, wie Änderungen im Begleitschreiben zu erläutern sind:**

1. [Wenn anstelle von ursprünglich 48 Ansprüchen nach der Änderung einiger Ansprüche 51 Ansprüche existieren]:  
"Die Ansprüche 1 bis 29, 31, 32, 34, 35, 37 bis 48 werden durch geänderte Ansprüche gleicher Numerierung ersetzt; Ansprüche 30, 33 und 36 unverändert; neue Ansprüche 49 bis 51 hinzugefügt."
2. [Wenn anstelle von ursprünglich 15 Ansprüchen nach der Änderung aller Ansprüche 11 Ansprüche existieren]:  
"Geänderte Ansprüche 1 bis 11 treten an die Stelle der Ansprüche 1 bis 15."
3. [Wenn ursprünglich 14 Ansprüche existierten und die Änderungen darin bestehen, daß einige Ansprüche gestrichen werden und neue Ansprüche hinzugefügt werden]:  
"Ansprüche 1 bis 6 und 14 unverändert; Ansprüche 7 bis 13 gestrichen; neue Ansprüche 15, 16 und 17 hinzugefügt." Oder  
"Ansprüche 7 bis 13 gestrichen; neue Ansprüche 15, 16 und 17 hinzugefügt; alle übrigen Ansprüche unverändert."
4. [Wenn verschiedene Arten von Änderungen durchgeführt werden]:  
"Ansprüche 1 bis 10 unverändert; Ansprüche 11 bis 13, 18 und 19 gestrichen; Ansprüche 14, 15 und 16 durch geänderten Anspruch 14 ersetzt; Anspruch 17 in geänderte Ansprüche 15, 16 und 17 unterteilt; neue Ansprüche 20 und 21 hinzugefügt."

### **"Erklärung nach Artikel 19(1)" (Regel 46.4)**

Den Änderungen kann eine Erklärung beigefügt werden, mit der die Änderungen erläutert und ihre Auswirkungen auf die Beschreibung und die Zeichnungen dargelegt werden (die nicht nach Artikel 19 (1) geändert werden können).

Die Erklärung wird zusammen mit der internationalen Anmeldung und den geänderten Ansprüchen veröffentlicht.

**Sie ist in der Sprache abzufassen, in der die internationale Anmeldung veröffentlicht wird.**

Sie muß kurz gehalten sein und darf, wenn in englischer Sprache abgefaßt oder ins Englische übersetzt, nicht mehr als 500 Wörter umfassen

Die Erklärung ist nicht zu verwechseln mit dem Begleitschreiben, das auf die Unterschiede zwischen den Ansprüchen in der eingereichten Fassung und den geänderten Ansprüchen hinweist, und ersetzt letzteres nicht. Sie ist auf einem gesonderten Blatt einzurichten und in der Überschrift als solche zu kennzeichnen, vorzugsweise mit den Worten "Erklärung nach Artikel 19 (1)".

Die Erklärung darf keine herabsetzenden Äußerungen über den internationalen Recherchenbericht oder die Bedeutung von in dem Bericht angeführten Veröffentlichungen enthalten. Sie darf auf im internationalen Recherchenbericht angeführte Veröffentlichungen, die sich auf einen bestimmten Anspruch beziehen, nur im Zusammenhang mit einer Änderung dieses Anspruchs Bezug nehmen.

### **Auswirkungen eines bereits gestellten Antrags auf Internationale vorläufige Prüfung**

Ist zum Zeitpunkt der Einreichung von Änderungen und einer Erklärung nach Artikel 19 bereits ein Antrag auf internationale vorläufige Prüfung gestellt worden, so soll der Anmelder möglichst, gleichzeitig mit der Einreichung der Änderungen (und der Erklärung) beim Internationalen Büro, auch bei der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde eine Kopie der Änderungen (und der Erklärung) sowie gegebenenfalls eine Übersetzung der Änderungen für das Verfahren vor der Behörde einreichen (siehe Regeln 55.3 a) und 62.2, erster Satz). Weitere Information sind den Anmerkungen zum Antragsformular (PCT/IPEA/401) zu entnehmen.

### **Auswirkungen von Änderungen hinsichtlich der Übersetzung der internationalen Anmeldung beim Eintritt in die nationale Phase**

Der Anmelder wird darauf hingewiesen, daß bei Eintritt in die nationale Phase möglicherweise anstatt oder zusätzlich zu der Übersetzung der Ansprüche in der eingereichten Fassung eine Übersetzung der nach Artikel 19 geänderten Ansprüche an die bestimmten/ausgewählten Ämter zu übermitteln ist.

Nähere Einzelheiten über die Erfordernisse jedes bestimmten/ausgewählten Amts sind Band II des PCT-Leitfadens für Anmelder zu entnehmen.

## PATENT COOPERATION TREATY

## From the INTERNATIONAL BUREAU

PGT

## **NOTIFICATION OF ELECTION**

(PCT Rule 61.2)

<p><b>The International Bureau of WIPO</b>  <b>34, chemin des Colombettes</b>  <b>1211 Geneva 20, Switzerland</b></p> <p>Facsimile No.: (41-22) 740.14.35</p>	<p><b>Authorized officer</b></p> <p><b>C. Cupello</b></p> <p>Telephone No.: (41-22) 338.83.38</p>
---	---



## PATENT COOPERATION TREATY

PCT	From the INTERNATIONAL BUREAU			
<p>To:</p> <p>MEYER, Thomas BASF Aktiengesellschaft D-67056 Ludwigshafen ALLEMAGNE</p>				
<p>Date of mailing (day/month/year) 24 January 2000 (24.01.00)</p>				
<p>Applicant's or agent's file reference 0775/000003</p>		<b>IMPORTANT NOTIFICATION</b>		
<p>International application No. PCT/EP99/03007</p>		<p>International filing date (day/month/year) 04 May 1999 (04.05.99)</p>		
<p>1. The following indications appeared on record concerning:</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> the applicant    <input checked="" type="checkbox"/> the inventor    <input type="checkbox"/> the agent    <input type="checkbox"/> the common representative</p>				
<p>Name and Address FEINDT, Hans-Jacob 10 Sugar Maple Lane Raritan Township, NJ 08822 United States of America</p>		<p>State of Nationality DE</p>	<p>State of Residence US</p>	
		<p>Telephone No.</p>		
		<p>Facsimile No.</p>		
		<p>Teleprinter No.</p>		
<p>2. The International Bureau hereby notifies the applicant that the following change has been recorded concerning:</p> <p><input type="checkbox"/> the person    <input type="checkbox"/> the name    <input checked="" type="checkbox"/> the address    <input type="checkbox"/> the nationality    <input type="checkbox"/> the residence</p>				
<p>Name and Address FEINDT, Hans-Jacob 10 Sugar Maple Lane Raritan Township, NJ 08822 United States of America</p>		<p>State of Nationality DE</p>	<p>State of Residence US</p>	
		<p>Telephone No.</p>		
		<p>Facsimile No.</p>		
		<p>Teleprinter No.</p>		
<p>3. Further observations, if necessary:</p>				
<p>4. A copy of this notification has been sent to:</p> <table style="width: 100%; border-collapse: collapse;"> <tr> <td style="width: 50%; vertical-align: top; padding: 5px;"> <input checked="" type="checkbox"/> the receiving Office  <input type="checkbox"/> the International Searching Authority  <input checked="" type="checkbox"/> the International Preliminary Examining Authority         </td> <td style="width: 50%; vertical-align: top; padding: 5px;"> <input type="checkbox"/> the designated Offices concerned  <input checked="" type="checkbox"/> the elected Offices concerned  <input type="checkbox"/> other:         </td> </tr> </table>			<input checked="" type="checkbox"/> the receiving Office <input type="checkbox"/> the International Searching Authority <input checked="" type="checkbox"/> the International Preliminary Examining Authority	<input type="checkbox"/> the designated Offices concerned <input checked="" type="checkbox"/> the elected Offices concerned <input type="checkbox"/> other:
<input checked="" type="checkbox"/> the receiving Office <input type="checkbox"/> the International Searching Authority <input checked="" type="checkbox"/> the International Preliminary Examining Authority	<input type="checkbox"/> the designated Offices concerned <input checked="" type="checkbox"/> the elected Offices concerned <input type="checkbox"/> other:			
<p>The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland  Facsimile No.: (41-22) 740.14.35</p>		<p>Authorized officer  Athina Nickitas-Etienne</p>		
		<p>Telephone No.: (41-22) 338.83.38</p>		



## PATENT COOPERATION TREATY

PCT

From the INTERNATIONAL BUREAU

NOTIFICATION OF THE RECORDING  
OF A CHANGE(PCT Rule 92bis.1 and  
Administrative Instructions, Section 422)

Date of mailing (day/month/year)  
24 January 2000 (24.01.00)

To:

MEYER, Thomas  
BASF Aktiengesellschaft  
D-67056 Ludwigshafen  
ALLEMAGNE

Applicant's or agent's file reference  
0775/000003

## IMPORTANT NOTIFICATION

International application No.  
PCT/EP99/03007

International filing date (day/month/year)  
04 May 1999 (04.05.99)

## 1. The following indications appeared on record concerning:

the applicant     the inventor     the agent     the common representative

Name and Address KARER, Rainer Marienburger Strasse 8 D-67659 Kaiserslautern Germany	State of Nationality DE	State of Residence DE
	Telephone No.	
	Facsimile No.	
	Teleprinter No.	

## 2. The International Bureau hereby notifies the applicant that the following change has been recorded concerning:

the person     the name     the address     the nationality     the residence

Name and Address KARER, Rainer Oskar-Schlemmer-Ring 48 D-67657 Kaiserslautern Germany	State of Nationality DE	State of Residence DE
	Telephone No.	
	Facsimile No.	
	Teleprinter No.	

## 3. Further observations, if necessary:

## 4. A copy of this notification has been sent to:

<input checked="" type="checkbox"/> the receiving Office	<input type="checkbox"/> the designated Offices concerned
<input type="checkbox"/> the International Searching Authority	<input checked="" type="checkbox"/> the elected Offices concerned
<input checked="" type="checkbox"/> the International Preliminary Examining Authority	<input type="checkbox"/> other:

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland  Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Authorized officer Athina Nickitas-Etienne  Telephone No.: (41-22) 338.83.38
---	---



(51) Internationale Patentklassifikation <sup>6</sup> : <b>B01J 8/24, 8/44, C08F 2/34, 10/00</b>	A1	(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: <b>WO 99/59712</b>  (43) Internationales Veröffentlichungsdatum: <b>25. November 1999 (25.11.99)</b>
(21) Internationales Aktenzeichen: <b>PCT/EP99/03007</b>		(81) Bestimmungsstaaten: <b>CA, CN, JP, KR, US, europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).</b>
(22) Internationales Anmeldedatum: <b>4. Mai 1999 (04.05.99)</b>		
(30) Prioritätsdaten: 198 21 955.5 15. Mai 1998 (15.05.98) DE 199 04 811.8 5. Februar 1999 (05.02.99) DE		Veröffentlicht <i>Mit internationalem Recherchenbericht. Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche zugelassenen Frist: Veröffentlichung wird wiederholt falls Änderungen eintreffen.</i>
(71) Anmelder ( <i>für alle Bestimmungsstaaten ausser US</i> ): <b>ELENAC GMBH [DE/DE]; D-77694 Kehl (DE).</b>		
(72) Erfinder; und		
(75) Erfinder/Anmelder ( <i>nur für US</i> ): <b>KARER, Rainer [DE/DE]; Marienburger Strasse 8, D-67659 Kaiserslautern (DE), EVERTZ, Kaspar [DE/DE]; Stettiner Strasse 13, D-67105 Schifferstadt (DE). MICKLITZ, Wolfgang [DE/DE]; Maconring 22, D-67434 Neustadt (DE). FEINDT, Hans-Jacob [DE/DE]; Grünberger Strasse 4, D-67117 Limburgerhof (DE). ROSENDORFER, Philipp [DE/DE]; Karolinenstrasse 50, D-67434 Neustadt (DE).</b>		
(74) Anwalt: <b>MEYER, Thomas; BASF Aktiengesellschaft, D-67056 Ludwigshafen (DE).</b>		

(54) Title: GASEOUS PHASE FLUIDIZED-BED REACTOR

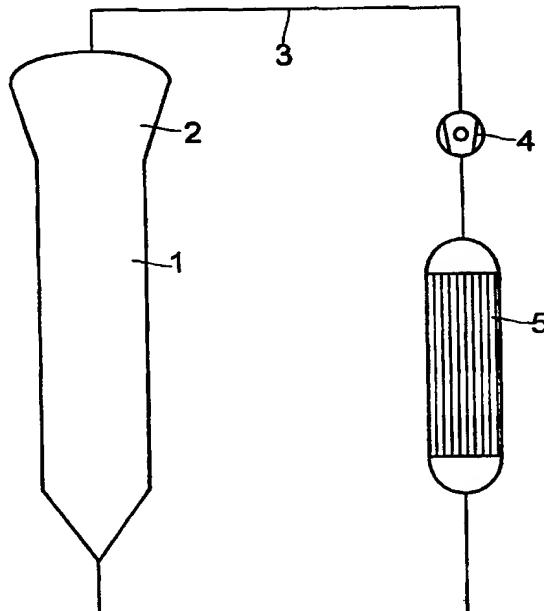
(54) Bezeichnung: GASPHASENWIRBELSCHICHTREAKTOR

## (57) Abstract

The invention relates to a gaseous phase fluidized-bed reactor for the polymerization of ethylenically unsaturated monomers. Said reactor comprises a reactor chamber (1) in the shape of a vertical tube, and preferably an equalizing zone (2) which connects to the upper part of the reactor chamber. The reactor also comprises a circulating gas line (3), a circulating gas compressor (4), and a cooling device (5). Either generally no gas distributor base or only one gas distributor base whose entire surface area of the gas inlet openings is greater than 20 % of the entire surface area of said gas distributor base is situated in the vicinity of the overflow of the reaction gas from the circulating gas line into the reaction chamber and in the lower part of the reactor chamber itself

## (57) Zusammenfassung

Gasphasenwirbelschichtreaktor zur Polymerisation ethylenisch ungesättigter Monomere, umfassend einen Reaktorraum (1) in Form eines vertikalen Rohres, gewünschtenfalls eine an den oberen Teil des Reaktorraumes anschließende Beruhigungszone (2), eine Kreisgasleitung (3), einen Kreisgaskompressor (4) und eine Kühlseinrichtung (5), wobei im Bereich des Übertritts des Reaktionsgases von der Kreisgasleitung in den Reaktorraum und im unteren Teil des Reaktorraumes selbst entweder überhaupt kein Gasverteilerboden oder nur ein Gasverteilerboden, dessen Gesamtfläche der Gasdurchlaßöffnungen mehr als 20 % der Gesamtfläche dieses Gasverteilerbodens beträgt, vorhanden ist.



**LEDIGLICH ZUR INFORMATION**

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidschan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Macedonien	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland	ML	Mali	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	MN	Mongolei	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MR	Mauritanien	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MW	Malawi	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MX	Mexiko	US	Vereinigte Staaten von Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CG	Kongo	KE	Kenia	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	PL	Polen		
CM	Kamerun	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CN	China	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CU	Kuba	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
CZ	Tschechische Republik	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DE	Deutschland	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
DK	Dänemark	LR	Liberia	SG	Singapur		
EE	Estland						

**Gasphasenwirbelschichtreaktor****Beschreibung**

5

Die vorliegende Erfindung betrifft einen Gasphasenwirbel-schichtreaktor zur Polymerisation ethylenisch ungesättigter Monomerer, umfassend einen Reaktorraum (1) in Form eines vertikalen Rohres, gewünschtenfalls eine an den oberen Teil des Reaktorraumes anschließende Beruhigungszone (2), eine Kreisgasleitung (3), einen Kreisgaskompressor (4) und eine Kühleinrichtung (5), dadurch gekennzeichnet, daß im Bereich des Übertritts des Reaktionsgases von der Kreisgasleitung in den Reaktorraum und im unteren Teil des Reaktorraumes selbst entweder überhaupt kein Gasverteilerboden oder nur ein Gasverteilerboden, dessen Gesamtfläche der Gasdurchlaßöffnungen mehr als 20 % der Gesamtfläche dieses Gasverteilerbodens beträgt, vorhanden ist. Den schematischen Aufbau des Reaktors zeigt Abbildung 1. Weiterhin betrifft die Erfindung Verfahren zur Polymerisation von Ethylen oder Copolymerisation von Ethylen mit C<sub>3</sub>- bis C<sub>8</sub>- $\alpha$ -Olefinen sowie zur Herstellung von EPDM, welche in einem solchen Reaktor durchgeführt werden.

Gasphasenpolymerisationsverfahren gehören heute zu den bevorzugten Verfahren zur Polymerisation ethylenisch ungesättigter Monomerer, insbesondere zur Polymerisation von Ethylen, gewünschtenfalls in Gegenwart weiterer ungesättigter Monomerer. Dabei gelten Polymerisationsverfahren in Wirbelschichten als besonders wirtschaftlich.

30

Gasphasenwirbelschichtreaktoren zur Durchführung solcher Verfahren sind seit langem bekannt. Die heute üblichen Reaktoren weisen dabei viele gemeinsame Strukturmerkmale auf: Sie bestehen unter anderem aus einem Reaktorraum in Form eines vertikalen Rohres, welches im oberen Teil meist eine Erweiterung des Durchmessers aufweist. In dieser Beruhigungszone herrscht infolge des größeren Rohrdurchmessers ein geringerer Gasstrom, der zu einer Begrenzung des Austrags des aus kleinteiligem Polymerisat bestehenden Wirbelbetts führt. Weiterhin enthalten diese Reaktoren eine Kreisgasleitung, in welcher Kühlaggregate zur Abfuhrung der Polymerisationswärme, ein Kompressor und gewünschtenfalls weitere Elemente wie beispielsweise ein Zyklon zur Entfernung von Polymerisat-Feinstaub angebracht sind. Beispiele solcher Gasphasen-wirbelschichtreaktoren wurden beispielsweise in EP-A-0 202 076, EP-A-0 549 252 und EP-A-0 697 421 beschrieben.

Alle bekannten Gasphasenwirbelschichtreaktoren besitzen im unteren Teil des Reaktionsraumes einen Reaktorboden, der den Reaktionsraum von der Kreisgasleitung und dem Gasverteilungsraum räumlich abschließt. Aufgabe dieses Reaktorbodens ist es zum einen, 5 ein Zurückfließen der Polymerisatpartikel in das Kreisgasrohr beim Ausschalten des Kompressors zu verhindern. Andererseits ist die allgemeine technische Lehre, daß der Druckverlust, der an diesem Reaktorboden infolge der relativ engen Eintrittsöffnung auftritt, eine gleichmäßige Gasverteilung im Reaktionsraum ge- 10 währleistet. Diese Lehrmeinung wird z. B. in US-A-3 298 792 und EP-A-0 697 421 vertreten.

Ein Reaktorboden in der heute üblichen Form, also ein engmaschiges Netz oder eine Metallplatte mit engen Bohrungen unterschiedlicher Geometrie weist jedoch einige Nachteile auf: Sowohl an der Anströmseite des Bodens als auch an der Bodenoberseite kann es immer wieder zu Polymerisatablagerungen, verursacht durch staubförmige Polymerisat- und Katalysatorpartikel, die von der Gasströmung in die Kreisgasleitung mitgerissen werden, kommen. Diese 15 Gefahr besteht besonders bei sogenannter Condensed-Mode-Fahrtweise, d.h., wenn im Kreisgas flüssige Monomere vorhanden sind. Neben diesen Ablagerungen, die zu Druckanstieg und letztenendes zu einem Abbruch der Polymerisation führen können, verursacht aber auch der Druckverlust im Normalbetrieb zusätzliche Energie- 20 kosten, da der Kompressor diesen Druckverlust durch höhere Leistung kompensieren muß. 25

Der vorliegenden Erfindung lag daher die Aufgabe zugrunde, einen Gasphasenwirbelschichtreaktor bereitzustellen, der diese Nachteile nicht mehr aufweist. 30

Demgemäß wurde der eingangs beschriebene Gasphasenwirbelschichtreaktor sowie Verfahren zur (Co-)polymerisation in einem solchen Reaktor gefunden. 35  
Der erfindungsgemäße Gasphasenwirbelschichtreaktor ist prinzipiell zur Polymerisation verschiedener ethylenisch ungesättigter Monomerer geeignet. Zu nennen sind beispielsweise Ethylen, Propylen, 1-Buten, Isobuten, 1-Penten, 1-Hexen, 1-Hepten, 1-Octen und auch 40 höhere  $\alpha$ -Olefine; weiterhin kommen z.B. auch Diene wie Butadien und Cyclopentadien und Cycloolefine wie Cyclopenten und Cyclohexen in Betracht. Die ethylenisch ungesättigten Monomere können allein oder in Mischung polymerisiert werden. Besonders geeignet ist der erfindungsgemäße Reaktor zur Homopolymerisation von 45 Ethylen, zur Herstellung von Ethylen-Hexen- und Ethylen-Buten-Copolymeren sowie zur Herstellung von EPDM.

Eine bevorzugte Ausführungsform des erfindungsgemäßen Gasphasenwirbelschichtreaktors ist dadurch gekennzeichnet, daß im Bereich des Übertritts des Reaktionsgases von der Kreisgasleitung in den Reaktorraum und im unteren Teil des Reaktorraumes selbst kein  
5 Gasverteilerboden vorhanden ist.

Weiterhin bevorzugt ist ein Reaktor, bei welchem im Bereich des Übertritts des Reaktionsgases von der Kreisgasleitung in den Reaktorraum oder im unteren Teil des Reaktionsraumes selbst ein  
10 Gasverteilerboden, dessen Gesamtfläche der Gasdurchlaßöffnungen mehr als 50 %, besonders bevorzugt mehr als 90 % der Gesamtfläche dieses Gasverteilerbodens beträgt, vorhanden ist.

Für den Fall, daß ganz auf einen Reaktorboden verzichtet wird,  
15 aber auch für die anderen Bodenkonstruktionen mit sehr geringem Druckverlust sollten besonders bei großen Reaktordimensionen beim Übergang des Kreisgases aus der Kreisgasleitung in den Reaktionsraum zur Umformung des Strömungsimpulses des eintretenden Gases Strömungsumformer angebracht sein. Dies kann durch verschiedene  
20 Gasumlenkvorrichtungen wie Leitbleche, Deflektoren, Aufprallbleche oder ähnliches erfolgen, wie sie dem Fachmann geläufig sind.

Bevorzugt sind Gasphasenwirbelschichtreaktoren, bei denen im Bereich des Übertritts des Reaktionsgases von der Kreisgasleitung  
25 in den Reaktorraum zur Umformung des Strömungsimpulses des eintretenden Gases Strömungsleitbleche angebracht sind, die so angeordnet sind, daß eine weitgehend homogene Einleitung der Gasströmung in die Wirbelschicht erzielt wird. Der Begriff "Blech" soll hier natürlich nicht das Material der Vorrichtung beschreiben,  
30 sondern lediglich deren Form und Funktion; die Art des Materials ist dabei unerheblich, es muß lediglich mit den Polymerisationsbedingungen kompatibel sein.

Eine weitere bevorzugte Vorrichtung zur Gasverteilung beim Eintritt in den Reaktionsraum des erfindungsgemäßen Reaktors besteht darin, daß im Bereich des Übertritts des Reaktionsgases von der Kreisgasleitung in den Reaktorraum zur Umformung des Strömungsimpulses des eintretenden Gases ein grobmaschiges Netz angebracht ist, auf welchem Kugeln in solcher Zahl, Größe und Verteilung  
40 fixiert sind, daß eine weitgehend homogene Einleitung der Gasströmung in die Wirbelschicht erzielt wird. Das Netz sollte dabei so grobmaschig sein, daß es praktisch keinen Druckverlust bewirkt; Aufgabe dieses Netzes ist es, die Kugeln, die als Ablenkeinrichtungen oder Deflektoren für den Gasstrom fungieren, in  
45 der gewünschten Position zu halten. Die Kugeln können gleichmäßig über das Netz verteilt sein. Besonders bei großem Reaktordurchmesser kann es jedoch sinnvoll sein, im Bereich der Reaktorachse,

also direkt über dem Gaseinfluß in der Mitte des Reaktorschnittes, eine größere Zahl solcher Kugeln anzutragen als im Randbereich.

- 5 Natürlich können statt der Kugeln auch andere geometrische Körper verwendet werden, Kugeln sind jedoch bevorzugt, da sie eine besonders gleichmäßige und verwirblungsarme Gasverteilung bewirken.

Die erfindungsgemäßen Gasphasenwirbelschichtreaktoren zeigen ihre  
10 vorteilhaften Eigenschaften besonders im industriellen Maßstab.  
Dabei sind Reaktoren bevorzugt, bei denen der Innendurchmesser des Reaktionsraumes (1) mehr als 0,5 m, besonders bevorzugt mehr als 1 m beträgt. Besonders vorteilhaft sind Reaktoren mit Innen-  
durchmessern zwischen 2 und 8 m.

15 Um zu verhindern, daß größere Mengen Feststoff in das Kreisgas-  
system gelangen, kann der erfindungsgemäße Reaktor mit ver-  
schiedenen Vorrichtungen zur Gas/Feststoftrennung versehen sein.  
In einer Ausführungsform des erfindungsgemäßen Reaktors schließt,  
20 wie eingangs erwähnt, an den oberen Teil des Reaktorraums (1)  
eine Beruhigungszone (2) an. Eine weitere Ausführungsform des  
erfindungsgemäßen Gasphasenwirbelschichtreaktors ist dadurch ge-  
kennzeichnet, daß zwischen dem Reaktorraum (1) und den Aggregaten  
der Kreisgasleitung ein Zyklon zur Abtrennung von Polymerisat-  
25 und Katalysatorpartikeln aus dem Kreisgas angebracht ist. Dieser  
Zyklon kann gewünschtenfalls auch mit einer Beruhigungszone (2)  
kombiniert werden. In einer weiteren Ausführungsform wird auf  
diese Beruhigungszone verzichtet, so daß sich direkt an den Reak-  
torraum die Kreisgasleitung bzw. zusätzlich eine Einrichtung zur  
30 Abtrennung von Polymerisat- und Katalysatorpartikeln aus dem  
Kreisgas, also beispielsweise ein Zyklon, anschließt. Auch für  
den Fall, daß der Reaktor weder eine Beruhigungszone noch eine  
andere Einrichtung zur Trennung von Kreisgas und Feststoff auf-  
weist, soll der Begriff "Reaktorraum" so verstanden werden, daß  
35 in diesem Teil des Reaktors im Wesentlichen die Polymerisation  
stattfindet und nur geringfügig Teile des Polymerisats mit dem  
Kreisgas zirkuliert werden.

Da die erfindungsgemäßen Reaktoren keinen Reaktorboden besitzen,  
40 der ein Zurückfließen vom Polymerisatteilchen in die Kreisgaslei-  
tung bei ausgeschaltetem Kompressor verhindern kann, kann es  
zweckmäßig sein, Maßnahmen zur Verhinderung dieses Zurückfließens  
zu ergreifen. So kann beispielsweise eine Klappe oder ein Schie-  
ber im Bereich der Mündung der Kreisgasleitung in den Reaktions-  
45 raum angebracht werden, die bei ausgeschaltetem Kompressor und z.  
B. auch beim Befüllen des Reaktors vor dem Beginn der Polymeri-  
sation geschlossen sein kann, beim Starten des Kompressors jedoch

geöffnet wird. Eine bevorzugte Ausführungsform der Erfindung sieht vor, daß die verschließbare Klappe oder der Schieber mit gleichmäßig verteilten Löchern versehen ist, die vorzugsweise einen Durchmesser zwischen 1 und 7 mm aufweisen. Mit Hilfe dieser 5 Klappe ist ein Aufwirbeln des Schüttgutes bei zunächst geschlossener Klappe möglich.

Erfindungsgemäß eignet sich der hier beschriebenen Gasphasenwirbelschichtreaktor besonders zur Durchführung von Verfahren zur 10 Polymerisation von Ethylen oder zur Copolymerisation von Ethylen mit C<sub>3</sub>- bis C<sub>8</sub>- $\alpha$ -Olefinen, wie sie Eingangs genannt sind. Weiterhin ist ein Verfahren zur Herstellung von EPDM bevorzugt, welches dadurch gekennzeichnet ist, daß die Copolymerisation in einem 15 erfindungsgemäßen Reaktor durchgeführt wird.

15 Da die Gefahr von Polymerisatablagerungen im Bereich des Reaktorbodens nicht oder nur sehr eingeschränkt besteht, kann auf viele aufwendige Vorsichtsmaßnahmen, wie sie bei der Verwendung herkömmlicher Gasverteilungsböden häufig ergriffen werden, verzichtet werden. So ist beispielsweise der Einbau eines Zyklons zur Feinstaubabtrennung am Reaktionsraumausgang im allgemeinen überflüssig. Auch kann problemlos flüssiges Monomer zudosiert werden, und zwar in größerer Menge, als sonst bei kondensierter Fahrweise 20 üblich ist. Eine Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens in Gegenwart kondensierter Monomere ist daher besonders vorteilhaft.

Demgemäß besteht eine vorteilhafte Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens darin, daß man ein Gemisch enthaltend 30 gasförmige und flüssige Monomere in den Reaktorraum einspeist.

Das erfindungsgemäße Polymerisationsverfahren wird in einer Weise durchgeführt, daß die Polymerisation im Wesentlichen im Reaktor 35 raum (1) erfolgt und nur geringe Partikelmengen mit dem Kreisgas zirkulieren. Dies kann durch die oben genannten Einrichtungen zur Gas-Feststofftrennung erreicht werden. Oft kann auf solche Einrichtungen jedoch weitgehend verzichtet werden, wenn man die Polymerisation nur knapp unterhalb der Erweichungstemperatur der 40 Polymeren durchführt.

Eine bevorzugte Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens ist daher dadurch gekennzeichnet, daß man zur Herstellung eines (Co)Polymerisats einer vorgewählten Dichte d die (Co)Polymerisation 45 bei einer Temperatur durchführt, welche in einem Bereich liegt, der von einer oberen Umhüllenden der Gleichung (I)

$$T_H = 171 + \frac{6d'}{0,84-d'} \quad (\text{I})$$

5 und einen unteren Umhüllenden der Gleichung (II)

$$T_N = 173 + \frac{7,3d'}{0,837-d'} \quad (\text{II})$$

10

begrenzt wird, worin die Variablen die folgende Bedeutung haben:

$T_H$  höchste Reaktionstemperatur in °C

15  $T_N$  niedrigste Reaktionstemperatur in °C

$d'$  Zahlenwert der Dichte (d) des herzustellenden (Co)Polymerisats.

20 Durch diese Hochtemperaturfahrweise fällt nur ein geringer Feinstaubanteil an, so daß eine Feststoffabtrennung meist überflüssig ist.

Beispiel

25

In einem Wirbelschichtreaktor gemäß Abb. 1 mit einem Reaktionsrauminnendurchmesser von 0,5 m und einer Reaktionsraumhöhe von 3 m wurde im Eingangsbereich des Reaktionsraumes ein Strömungsumformer angebracht. Ein Gasverteilerboden war nicht vorhanden.

30

In diesem Reaktor wurde eine Copolymerisation unter folgenden Bedingungen durchgeführt:

Gaszusammensetzung: 50 % Ethylen

35 45 % Stickstoff  
5 % 1-Buten

Kreisgasgeschwindigkeit: 35 m/s

Temperatur: 115°C

Druck: 20 bar

40

Die Polymerisation wurde kontinuierlich über 60 h durchgeführt. Nach der Polymerisation wurde der Reaktor geöffnet, es waren keinerlei Brocken oder Beläge sichtbar.

45

**Patentansprüche**

1. Gasphasenwirbelschichtreaktor zur Polymerisation ethylenisch  
5 ungesättigter Monomerer, umfassend einen Reaktorraum (1) in  
Form eines vertikalen Rohres, eine Kreisgasleitung (3), einen  
Kreisgaskompressor (4) und eine Kühleinrichtung (5), dadurch  
gekennzeichnet, daß im Bereich des Übertritts des Reaktions-  
10 gases von der Kreisgasleitung in den Reaktorraum und im un-  
teren Teil des Reaktorraumes selbst entweder überhaupt kein  
Gasverteilerboden oder nur ein Gasverteilerboden, dessen  
Gesamtfläche der Gasdurchlaßöffnungen mehr als 20 % der  
Gesamtfläche dieses Gasverteilerbodens beträgt, vorhanden  
ist.
- 15 2. Gasphasenwirbelschichtreaktor nach Anspruch 1, dadurch ge-  
kennzeichnet, daß im Bereich des Übertritts des Reaktionsga-  
ses von der Kreisgasleitung in den Reaktorraum und im unteren  
20 Teil des Reaktorraumes selbst kein Gasverteilerboden vorhan-  
den ist.
- 25 3. Gasphasenwirbelschichtreaktor nach Anspruch 1, dadurch ge-  
kennzeichnet, daß im Bereich des Übertritts des Reaktionsga-  
ses von der Kreisgasleitung in den Reaktorraum oder im un-  
teren Teil des Reaktorraumes selbst ein Gasverteilerboden,  
dessen Gesamtfläche der Gasdurchlaßöffnungen mehr als 90 %  
25 der Gesamtfläche dieses Gasverteilerbodens beträgt, vorhanden  
ist.
- 30 4. Gasphasenwirbelschichtreaktor nach den Ansprüchen 1 bis 3,  
dadurch gekennzeichnet, daß im Bereich des Übertritts des Re-  
aktionsgases von der Kreisgasleitung in den Reaktorraum zur  
Umformung des Strömungsimpulses des eintretenden Gases Strö-  
mungsumformer angebracht sind, die so angeordnet sind, daß  
35 eine weitgehend homogene Einleitung der Gasströmung in die  
Wirbelschicht erzielt wird.

40

45

Zeichn.

5. Gasphasenwirbelschichtreaktor nach den Ansprüchen 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß im Bereich des Übertritts des Reaktionsgases von der Kreisleitung in den Reaktorraum zur Umformung des Strömungsimpulses des eintretenden Gases ein grobmaschiges Netz angebracht ist, auf welchem Kugeln in solcher Zahl, Größe und Verteilung fixiert sind, daß eine weitgehend homogene Einleitung der Gasströmung in die Wirbelschicht erzielt wird.
- 10 6. Gasphasenwirbelschichtreaktor nach den Ansprüchen 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß der Innendurchmesser des Reaktorraumes (1) mehr als 0,5 m beträgt.
- 15 7. Gasphasenwirbelschichtreaktor nach den Ansprüchen 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß zur Verhinderung des Eindringens vom Polymerisatpartikeln in die Kreisgasleitung bei abgeschaltetem Kompressor im Bereich des Übergangs von der Kreisleitung in den unteren Teil des Reaktorraumes eine verschließbare Klappe angebracht ist.
- 20 8. Gasphasenwirbelschichtreaktor nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, daß die verschließbare Klappe mit gleichmäßig verteilten Löchern mit einem Durchmesser zwischen 1 und 7 mm versehen ist.
- 25 9. Gasphasenwirbelschichtreaktor nach den Ansprüchen 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, daß an dem oberen Teil des Reaktorraumes (1) eine Beruhigungszone (2) anschließt.
- 30 10. Gasphasenwirbelschichtreaktor nach den Ansprüchen 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, daß zwischen dem Reaktorraum (1) und den Aggregaten der Kreisgasleitung ein Zyklon zur Abtrennung von Polymerisat- und Katalysatorpartikeln aus dem Kreisgas angebracht ist.
- 35 11. Verfahren zur Polymerisation von Ethylen oder zur Copolymerisation von Ethylen mit C<sub>3</sub>- bis C<sub>8</sub>- $\alpha$ -Olefinen, dadurch gekennzeichnet, daß die (Co-)polymerisation in einem Gasphasenwirbelschichtreaktor gemäß den Ansprüchen 1 bis 10 durchgeführt wird.
- 40 12. Verfahren nach Anspruch 11, dadurch gekennzeichnet, daß die Polymerisation in Gegenwart kondensierter Monomerer und/oder kondensierter Kohlenwasserstoffe durchgeführt wird.

13. Verfahren nach Anspruch 11, dadurch gekennzeichnet, daß man ein Gemisch enthaltend gasförmige und flüssige Monomere in den Reaktorraum einspeist.
- 5 14. Verfahren nach den Ansprüchen 11 bis 13, dadurch gekennzeichnet, daß man zur Herstellung eines (Co)Polymerisats einer vorgewählten Dichte  $d'$  die (Co)Polymerisation bei einer Temperatur durchführt, welche in einem Bereich liegt, der von einer oberen Umhüllenden der Gleichung (I)

10

$$T_H = 171 + \frac{6d'}{0,84-d'} \quad (\text{I})$$

15

und einen unteren Umhüllenden der Gleichung (II)

$$T_N = 173 + \frac{7,3d'}{0,837-d'} \quad (\text{II})$$

20

begrenzt wird, worin die Variablen die folgende Bedeutung haben:

25  $T_H$  höchste Reaktionstemperatur in °C

$T_N$  niedrigste Reaktionstemperatur in °C

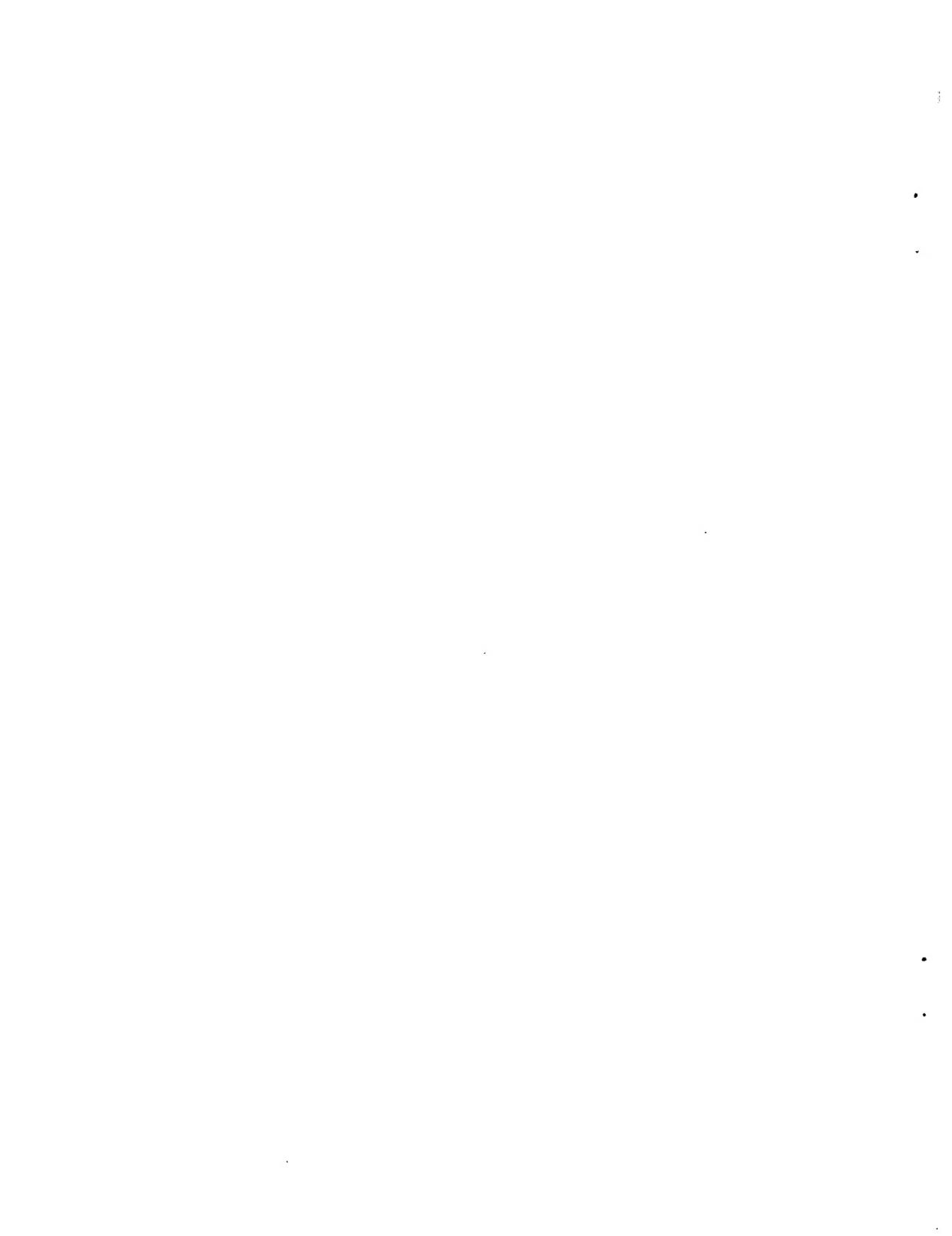
30  $d'$  Zahlenwert der Dichte ( $d$ ) des herzustellenden (Co)Polymerisats.

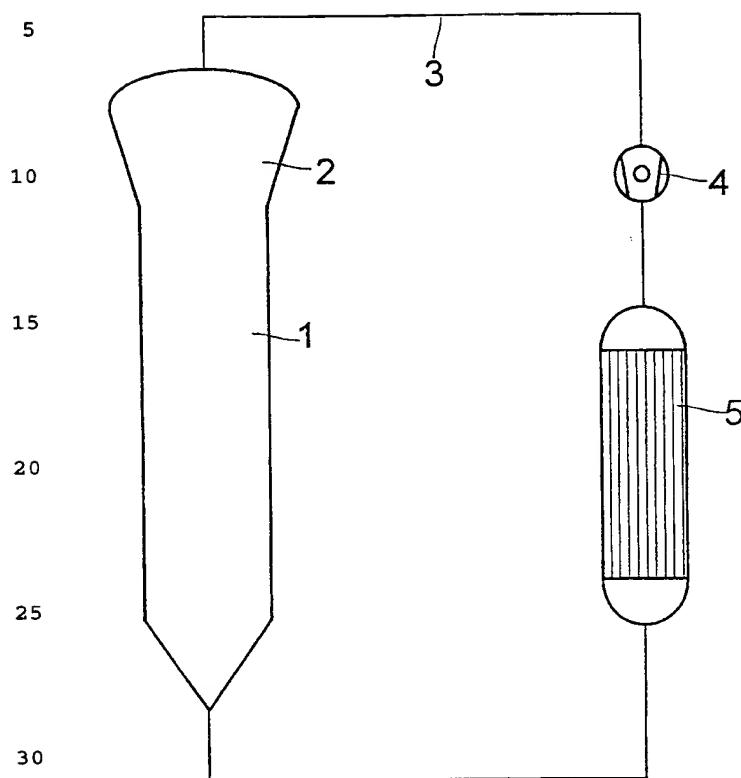
- 35 15. Verfahren zur Herstellung von EPDM, dadurch gekennzeichnet, daß die Copolymerisation in einem Reaktor gemäß den Ansprüchen 1 bis 10 durchgeführt wird.

35

40

45

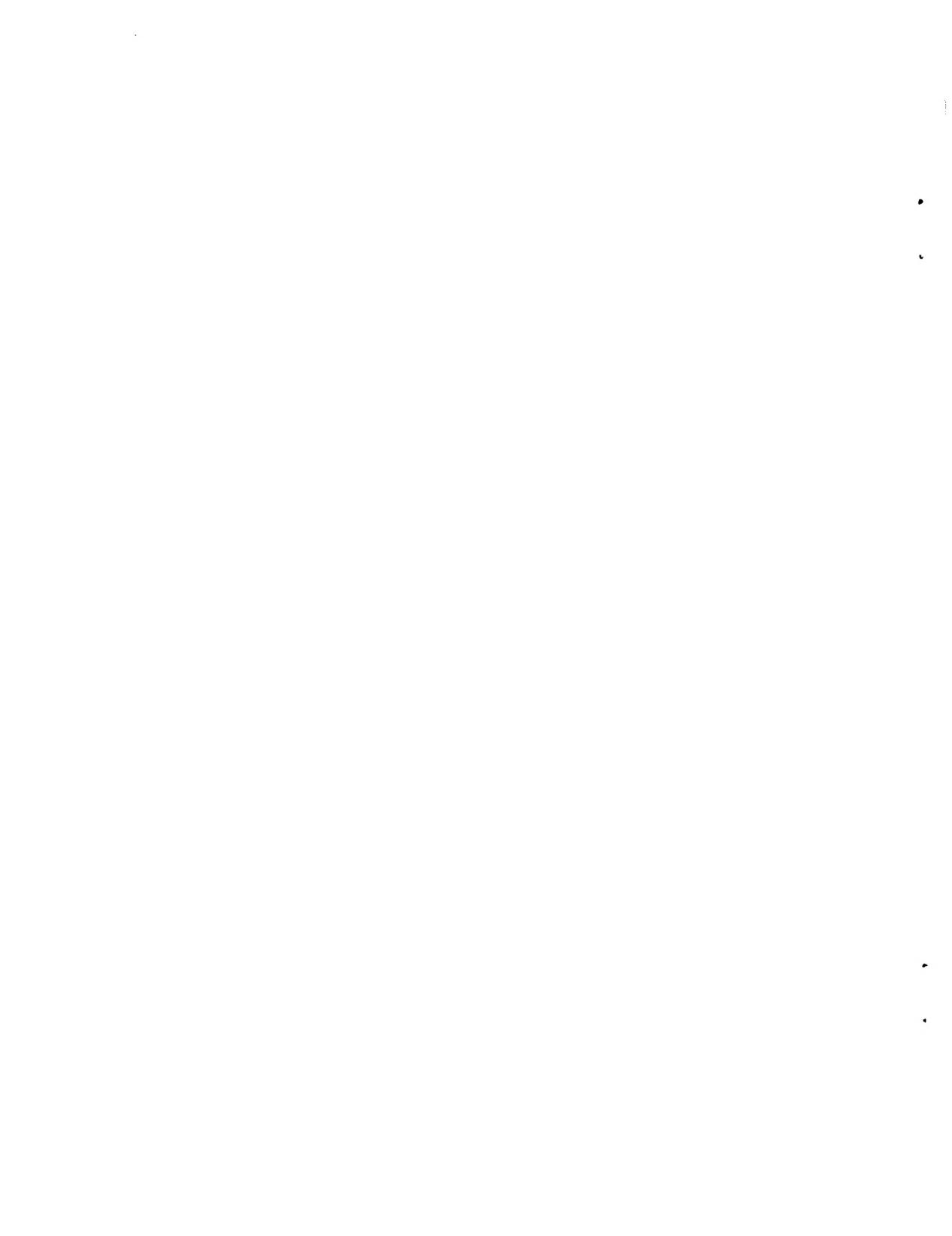




35

40

45



## Gasphasenwirbelschichtreaktor

### Beschreibung

5

Die vorliegende Erfindung betrifft einen Gasphasenwirbel-schichtreaktor zur Polymerisation ethylenisch ungesättigter Mono-merer, umfassend einen Reaktorraum (1) in Form eines vertikalen Rohres, gewünschtenfalls eine an den oberen Teil des Reaktorrau-10 mes anschließende Beruhigungszone (2), eine Kreisgasleitung (3), einen Kreisgaskompressor (4) und eine Kühleinrichtung (5), da-durch gekennzeichnet, daß im Bereich des Übertritts des Reakti-onsgases von der Kreisgasleitung in den Reaktorraum und im un-teren Teil des Reaktorraumes selbst entweder überhaupt kein Gas-15 verteilerboden oder nur ein Gasverteilerboden, dessen Gesamt-fläche der Gasdurchlaßöffnungen mehr als 20 % der Gesamtfläche dieses Gasverteilerbodens beträgt, vorhanden ist. Den schemati-schen Aufbau des Reaktors zeigt Abbildung 1. Weiterhin betrifft die Erfindung Verfahren zur Polymerisation von Ethylen oder 20 Copolymerisation von Ethylen mit C<sub>3</sub>- bis C<sub>8</sub>- $\alpha$ -Olefinen sowie zur Herstellung von EPDM, welche in einem solchen Reaktor durch-geführ werden.

Gasphasenpolymerisationsverfahren gehören heute zu den bevorzug-ten Verfahren zur Polymerisation ethylenisch ungesättigter Mono-merer, insbesondere zur Polymerisation von Ethylen, gewünschtenfalls in Gegenwart weiterer ungesättigter Monomerer. Dabei gelten Polymerisationsverfahren in Wirbelschichten als besonders wirt-schaftlich.

30

Gasphasenwirbelschichtreaktoren zur Durchführung solcher Verfah-ren sind seit langem bekannt. Die heute üblichen Reaktoren weisen dabei viele gemeinsame Strukturmerkmale auf: Sie bestehen unter anderem aus einem Reaktorraum in Form eines vertikalen Rohres, 35 welches im oberen Teil meist eine Erweiterung des Durchmessers aufweist. In dieser Beruhigungszone herrscht infolge des größeren Rohrdurchmessers ein geringerer Gasstrom, der zu einer Begrenzung des Austrags des aus kleinteiligem Polymerisat bestehenden Wirbelbetts führt. Weiterhin enthalten diese Reaktoren eine 40 Kreisgasleitung, in welcher Kühlaggregate zur Abführung der Poly-merisationswärme, ein Kompressor und gewünschtenfalls weitere Elemente wie beispielsweise ein Zyklon zur Entfernung von Polyme-ri sat-Feinstaub angebracht sind. Beispiele solcher Gasphasen-wirbelschichtreaktoren wurden beispielsweise in EP-A-0 202 076, 45 EP-A-0 549 252 und EP-A-0 697 421 beschrieben.

Alle bekannten Gasphasenwirbelschichtreaktoren besitzen im unteren Teil des Reaktionsraumes einen Reaktorboden, der den Reaktionsraum von der Kreisgasleitung und dem Gasverteilungsraum räumlich abschließt. Aufgabe dieses Reaktorbodens ist es zum einen, 5 ein Zurückfließen der Polymerisatpartikel in das Kreisgasrohr beim Ausschalten des Kompressors zu verhindern. Andererseits ist die allgemeine technische Lehre, daß der Druckverlust, der an diesem Reaktorboden infolge der relativ engen Eintrittsöffnung auftritt, eine gleichmäßige Gasverteilung im Reaktionsraum ge- 10 währleistet. Diese Lehrmeinung wird z. B. in US-A-3 298 792 und EP-A-0 697 421 vertreten.

Ein Reaktorboden in der heute üblichen Form, also ein engmaschiges Netz oder eine Metallplatte mit engen Bohrungen unterschiedlicher Geometrie weist jedoch einige Nachteile auf: Sowohl an der Anströmseite des Bodens als auch an der Bodenoberseite kann es 15 immer wieder zu Polymerisatablagerungen, verursacht durch staubförmige Polymerisat- und Katalysatorpartikel, die von der Gasströmung in die Kreisgasleitung mitgerissen werden, kommen. Diese Gefahr besteht besonders bei sogenannter Condensed-Mode-Fahrt 20weise, d.h., wenn im Kreisgas flüssige Monomere vorhanden sind. Neben diesen Ablagerungen, die zu Druckanstieg und letztenendes zu einem Abbruch der Polymerisation führen können, verursacht aber auch der Druckverlust im Normalbetrieb zusätzliche Energie- 25kosten, da der Kompressor diesen Druckverlust durch höhere Leistung kompensieren muß.

Der vorliegenden Erfindung lag daher die Aufgabe zugrunde, einen Gasphasenwirbelschichtreaktor bereitzustellen, der diese Nach- 30 teile nicht mehr aufweist.

Demgemäß wurde der eingangs beschriebene Gasphasenwirbelschichtreaktor sowie Verfahren zur (Co-)polymerisation in einem solchen Reaktor gefunden. 35  
Der erfindungsgemäße Gasphasenwirbelschichtreaktor ist prinzipiell zur Polymerisation verschiedener ethylenisch ungesättigter Monomerer geeignet. Zu nennen sind beispielsweise Ethylen, Propylen, 1-Buten, Isobuten, 1-Penten, 1-Hexen, 1-Hepten, 1-Octen und auch 40 höhere  $\alpha$ -Olefine; weiterhin kommen z.B. auch Diene wie Butadien und Cyclopentadien und Cycloolefine wie Cyclopenten und Cyclohexen in Betracht. Die ethylenisch ungesättigten Monomere können allein oder in Mischung polymerisiert werden. Besonders geeignet ist der erfindungsgemäße Reaktor zur Homopolymerisation von 45 Ethylen, zur Herstellung von Ethylen-Hexen- und Ethylen-Buten-Copolymeren sowie zur Herstellung von EPDM.

Eine bevorzugte Ausführungsform des erfindungsgemäßen Gasphasenwirbelschichtreaktors ist dadurch gekennzeichnet, daß im Bereich des Übertritts des Reaktionsgases von der Kreisgasleitung in den Reaktorraum und im unteren Teil des Reaktorraumes selbst kein  
5 Gasverteilerboden vorhanden ist.

Weiterhin bevorzugt ist ein Reaktor, bei welchem im Bereich des Übertritts des Reaktionsgases von der Kreisgasleitung in den Reaktorraum oder im unteren Teil des Reaktionsraumes selbst ein  
10 Gasverteilerboden, dessen Gesamtfläche der Gasdurchlaßöffnungen mehr als 50 %, besonders bevorzugt mehr als 90 % der Gesamtfläche dieses Gasverteilerbodens beträgt, vorhanden ist.

Für den Fall, daß ganz auf einen Reaktorboden verzichtet wird,  
15 aber auch für die anderen Bodenkonstruktionen mit sehr geringem Druckverlust sollten besonders bei großen Reaktordimensionen beim Übergang des Kreisgases aus der Kreisgasleitung in den Reaktionsraum zur Umformung des Strömungsimpulses des eintretenden Gases Strömungsumformer angebracht sein. Dies kann durch verschiedene  
20 Gasumlenkvorrichtungen wie Leitbleche, Deflektoren, Aufprallbleche oder ähnliches erfolgen, wie sie dem Fachmann geläufig sind.

Bevorzugt sind Gasphasenwirbelschichtreaktoren, bei denen im Bereich des Übertritts des Reaktionsgases von der Kreisgasleitung  
25 in den Reaktorraum zur Umformung des Strömungsimpulses des eintretenden Gases Strömungsleitbleche angebracht sind, die so angeordnet sind, daß eine weitgehend homogene Einleitung der Gasströmung in die Wirbelschicht erzielt wird. Der Begriff "Blech" soll hier natürlich nicht das Material der Vorrichtung beschreiben,  
30 sondern lediglich deren Form und Funktion; die Art des Materials ist dabei unerheblich, es muß lediglich mit den Polymerisationsbedingungen kompatibel sein.

Eine weitere bevorzugte Vorrichtung zur Gasverteilung beim Eintreten in den Reaktionsraum des erfindungsgemäßen Reaktors besteht darin, daß im Bereich des Übertritts des Reaktionsgases von der Kreisgasleitung in den Reaktorraum zur Umformung des Strömungsimpulses des eintretenden Gases ein grobmaschiges Netz angebracht ist, auf welchem Kugeln in solcher Zahl, Größe und Verteilung  
40 fixiert sind, daß eine weitgehend homogene Einleitung der Gasströmung in die Wirbelschicht erzielt wird. Das Netz sollte dabei so grobmaschig sein, daß es praktisch keinen Druckverlust bewirkt; Aufgabe dieses Netzes ist es, die Kugeln, die als Ablenkteinrichtungen oder Deflektoren für den Gasstrom fungieren, in  
45 der gewünschten Position zu halten. Die Kugeln können gleichmäßig über das Netz verteilt sein. Besonders bei großem Reaktordurchmesser kann es jedoch sinnvoll sein, im Bereich der Reaktorachse,

also direkt über dem Gaseinfluß in der Mitte des Reaktorschrittes, eine größere Zahl solcher Kugeln anzurufen als im Randbereich.

5 Natürlich können statt der Kugeln auch andere geometrische Körper verwendet werden, Kugeln sind jedoch bevorzugt, da sie eine besonders gleichmäßige und verwirblungsarme Gasverteilung bewirken.

Die erfindungsgemäßen Gasphasenwirbelschichtreaktoren zeigen ihre  
10 vorteilhaften Eigenschaften besonders im industriellen Maßstab.  
Dabei sind Reaktoren bevorzugt, bei denen der Innendurchmesser  
des Reaktionsraumes (1) mehr als 0,5 m, besonders bevorzugt mehr  
als 1 m beträgt. Besonders vorteilhaft sind Reaktoren mit Innen-  
durchmessern zwischen 2 und 8 m.

15 Um zu verhindern, daß größere Mengen Feststoff in das Kreisgas-  
system gelangen, kann der erfindungsgemäße Reaktor mit ver-  
schiedenen Vorrichtungen zur Gas/Feststofftrennung versehen sein.  
In einer Ausführungsform des erfindungsgemäßen Reaktors schließt,  
20 wie eingangs erwähnt, an den oberen Teil des Reaktorraums (1)  
eine Beruhigungszone (2) an. Eine weitere Ausführungsform des  
erfindungsgemäßen Gasphasenwirbelschichtreaktors ist dadurch ge-  
kennzeichnet, daß zwischen dem Reaktorraum (1) und den Aggregaten  
der Kreisgasleitung ein Zyklon zur Abtrennung von Polymerisat-  
25 und Katalysatorpartikeln aus dem Kreisgas angebracht ist. Dieser  
Zyklon kann gewünschtenfalls auch mit einer Beruhigungszone (2)  
kombiniert werden. In einer weiteren Ausführungsform wird auf  
diese Beruhigungszone verzichtet, so daß sich direkt an den Reak-  
torraum die Kreisgasleitung bzw. zusätzlich eine Einrichtung zur  
30 Abtrennung von Polymerisat- und Katalysatorpartikeln aus dem  
Kreisgas, also beispielsweise ein Zyklon, anschließt. Auch für  
den Fall, daß der Reaktor weder eine Beruhigungszone noch eine  
andere Einrichtung zur Trennung von Kreisgas und Feststoff auf-  
weist, soll der Begriff "Reaktorraum" so verstanden werden, daß  
35 in diesem Teil des Reaktors im Wesentlichen die Polymerisation  
stattfindet und nur geringfügig Teile des Polymerisats mit dem  
Kreisgas zirkuliert werden.

Da die erfindungsgemäßen Reaktoren keinen Reaktorboden besitzen,  
40 der ein Zurückfließen vom Polymerisatteilchen in die Kreisgaslei-  
tung bei ausgeschaltetem Kompressor verhindern kann, kann es  
zweckmäßig sein, Maßnahmen zur Verhinderung dieses Zurückfließens  
zu ergreifen. So kann beispielsweise eine Klappe oder ein Schie-  
ber im Bereich der Mündung der Kreisgasleitung in den Reaktions-  
45 raum angebracht werden, die bei ausgeschaltetem Kompressor und z.  
B. auch beim Befüllen des Reaktors vor dem Beginn der Polymeri-  
sation geschlossen sein kann, beim Starten des Kompressors jedoch

geöffnet wird. Eine bevorzugte Ausführungsform der Erfindung sieht vor, daß die verschließbare Klappe oder der Schieber mit gleichmäßig verteilten Löchern versehen ist, die vorzugsweise einen Durchmesser zwischen 1 und 7 mm aufweisen. Mit Hilfe dieser 5 Klappe ist ein Aufwirbeln des Schüttgutes bei zunächst geschlossener Klappe möglich.

Erfindungsgemäß eignet sich der hier beschriebenen Gasphasenwirbelschichtreaktor besonders zur Durchführung von Verfahren zur 10 Polymerisation von Ethylen oder zur Copolymerisation von Ethylen mit C<sub>3</sub>- bis C<sub>8</sub>- $\alpha$ -Olefinen, wie sie Eingangs genannt sind. Weiterhin ist ein Verfahren zur Herstellung von EPDM bevorzugt, welches dadurch gekennzeichnet ist, daß die Copolymerisation in einem 15 erfundungsgemäßen Reaktor durchgeführt wird.

15

Da die Gefahr von Polymerisatablagerungen im Bereich des Reaktorbodens nicht oder nur sehr eingeschränkt besteht, kann auf viele aufwendige Vorsichtsmaßnahmen, wie sie bei der Verwendung herkömmlicher Gasverteilungsböden häufig ergriffen werden, verzichtet werden. So ist beispielsweise der Einbau eines Zyklons zur 20 Feinstaubabtrennung am Reaktionsraumausgang im allgemeinen überflüssig. Auch kann problemlos flüssiges Monomer zudosiert werden, und zwar in größerer Menge, als sonst bei kondensierter Fahrweise üblich ist. Eine Durchführung des erfundungsgemäßen Verfahrens in 25 Gegenwart kondensierter Monomere ist daher besonders vorteilhaft.

Demgemäß besteht eine vorteilhafte Ausführungsform des 30 erfundungsgemäßen Verfahrens darin, daß man ein Gemisch enthaltend gasförmige und flüssige Monomere in den Reaktorraum einspeist.

Das erfundungsgemäße Polymerisationsverfahren wird in einer Weise durchgeführt, daß die Polymerisation im Wesentlichen im Reaktor- 35 raum (1) erfolgt und nur geringe Partikelmengen mit dem Kreisgas zirkulieren. Dies kann durch die oben genannten Einrichtungen zur Gas-Feststofftrennung erreicht werden. Oft kann auf solche Einrichtungen jedoch weitgehend verzichtet werden, wenn man die 40 Polymerisation nur knapp unterhalb der Erweichungstemperatur der Polymeren durchführt.

Eine bevorzugte Ausführungsform des erfundungsgemäßen Verfahrens ist daher dadurch gekennzeichnet, daß man zur Herstellung eines (Co)Polymerisats einer vorgewählten Dichte d die (Co)Polymerisation 45 bei einer Temperatur durchführt, welche in einem Bereich liegt, der von einer oberen Umhüllenden der Gleichung (I)

$$T_H = 171 + \frac{6d'}{0,84-d'} \quad (\text{I})$$

5 und einen unteren Umhüllenden der Gleichung (II)

$$T_N = 173 + \frac{7,3d'}{0,837-d'} \quad (\text{II})$$

10

begrenzt wird, worin die Variablen die folgende Bedeutung haben:

$T_H$  höchste Reaktionstemperatur in °C

15  $T_N$  niedrigste Reaktionstemperatur in °C

$d'$  Zahlenwert der Dichte ( $d$ ) des herzustellenden (Co)Polymerisats.

20 Durch diese Hochtemperaturfahrweise fällt nur ein geringer Feinstaubanteil an, so daß eine Feststoffabtrennung meist überflüssig ist.

Beispiel

25

In einem Wirbelschichtreaktor gemäß Abb. 1 mit einem Reaktionsrauminnendurchmesser von 0,5 m und einer Reaktionsraumhöhe von 3 m wurde im Eingangsbereich des Reaktionsraumes ein Strömungsumformer angebracht. Ein Gasverteilerboden war nicht vorhanden.

30

In diesem Reaktor wurde eine Copolymerisation unter folgenden Bedingungen durchgeführt:

Gaszusammensetzung: 50 % Ethylen

35 45 % Stickstoff  
5 % 1-Buten

Kreisgasgeschwindigkeit: 35 m/s

Temperatur: 115°C

Druck: 20 bar

40

Die Polymerisation wurde kontinuierlich über 60 h durchgeführt. Nach der Polymerisation wurde der Reaktor geöffnet, es waren keinerlei Brocken oder Beläge sichtbar.

45

## Patentansprüche

1. Gasphasenwirbelschichtreaktor zur Polymerisation ethylenisch  
5 ungesättigter Monomerer, umfassend einen Reaktorraum (1) in Form eines vertikalen Rohres, eine Kreisgasleitung (3), einen Kreisgaskompressor (4) und eine Kühleinrichtung (5), dadurch gekennzeichnet, daß im Bereich des Übertritts des Reaktionsgases von der Kreisgasleitung in den Reaktorraum und im unteren Teil des Reaktorraumes selbst entweder überhaupt kein Gasverteilerboden oder nur ein Gasverteilerboden, dessen Gesamtfläche der Gasdurchlaßöffnungen mehr als 20 % der Gesamtfläche dieses Gasverteilerbodens beträgt, vorhanden ist.
- 15 2. Gasphasenwirbelschichtreaktor nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß im Bereich des Übertritts des Reaktionsgases von der Kreisgasleitung in den Reaktorraum und im unteren Teil des Reaktorraumes selbst kein Gasverteilerboden vorhanden ist.
- 20 3. Gasphasenwirbelschichtreaktor nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß im Bereich des Übertritts des Reaktionsgases von der Kreisgasleitung in den Reaktorraum oder im unteren Teil des Reaktorraumes selbst ein Gasverteilerboden, dessen Gesamtfläche der Gasdurchlaßöffnungen mehr als 90 % der Gesamtfläche dieses Gasverteilerbodens beträgt, vorhanden ist.
- 25 30 4. Gasphasenwirbelschichtreaktor nach den Ansprüchen 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß im Bereich des Übertritts des Reaktionsgases von der Kreisgasleitung in den Reaktorraum zur Umformung des Strömungsimpulses des eintretenden Gases Strömungsumformer angebracht sind, die so angeordnet sind, daß eine weitgehend homogene Einleitung der Gasströmung in die Wirbelschicht erzielt wird.

40

45

Zeichn.

5. Gasphasenwirbelschichtreaktor nach den Ansprüchen 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß im Bereich des Übertritts des Reaktionsgases von der Kreisleitung in den Reaktorraum zur Umformung des Strömungsimpulses des eintretenden Gases ein grobmaschiges Netz angebracht ist, auf welchem Kugeln in solcher Zahl, Größe und Verteilung fixiert sind, daß eine weitgehend homogene Einleitung der Gasströmung in die Wirbelschicht erzielt wird.
- 10 6. Gasphasenwirbelschichtreaktor nach den Ansprüchen 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß der Innendurchmesser des Reaktorraumes (1) mehr als 0,5 m beträgt.
- 15 7. Gasphasenwirbelschichtreaktor nach den Ansprüchen 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß zur Verhinderung des Eindringens vom Polymerisatpartikeln in die Kreisgasleitung bei abgeschaltetem Kompressor im Bereich des Übergangs von der Kreisleitung in den unteren Teil des Reaktorraumes eine verschließbare Klappe angebracht ist.
- 20 8. Gasphasenwirbelschichtreaktor nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, daß die verschließbare Klappe mit gleichmäßig verteilten Löchern mit einem Durchmesser zwischen 1 und 7 mm versehen ist.
- 25 9. Gasphasenwirbelschichtreaktor nach den Ansprüchen 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, daß an dem oberen Teil des Reaktorraumes (1) eine Beruhigungszone (2) anschließt.
- 30 10. Gasphasenwirbelschichtreaktor nach den Ansprüchen 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, daß zwischen dem Reaktorraum (1) und den Aggregaten der Kreisgasleitung ein Zyklon zur Abtrennung von Polymerisat- und Katalysatorpartikeln aus dem Kreisgas angebracht ist.
- 35 11. Verfahren zur Polymerisation von Ethylen oder zur Copolymerisation von Ethylen mit C<sub>3</sub>- bis C<sub>8</sub>-α-Olefinen, dadurch gekennzeichnet, daß die (Co-)polymerisation in einem Gasphasenwirbelschichtreaktor gemäß den Ansprüchen 1 bis 10 durchgeführt wird.
- 40 12. Verfahren nach Anspruch 11, dadurch gekennzeichnet, daß die Polymerisation in Gegenwart kondensierter Monomerer und/oder kondensierter Kohlenwasserstoffe durchgeführt wird.

13. Verfahren nach Anspruch 11, dadurch gekennzeichnet, daß man ein Gemisch enthaltend gasförmige und flüssige Monomere in den Reaktorraum einspeist.

5 14. Verfahren nach den Ansprüchen 11 bis 13, dadurch gekennzeichnet, daß man zur Herstellung eines (Co)Polymerisats einer vorgewählten Dichte  $d'$  die (Co)Polymerisation bei einer Temperatur durchführt, welche in einem Bereich liegt, der von einer oberen Umhüllenden der Gleichung (I)

10

$$T_H = 171 + \frac{6d'}{0,84 - d'} \quad (I)$$

15 und einen unteren Umhüllenden der Gleichung (II)

$$T_N = 173 + \frac{7,3d'}{0,837 - d'} \quad (II)$$

20

begrenzt wird, worin die Variablen die folgende Bedeutung haben:

25  $T_H$  höchste Reaktionstemperatur in °C

$T_N$  niedrigste Reaktionstemperatur in °C

$d'$  Zahlenwert der Dichte ( $d$ ) des herzustellenden (Co)Polymerisats.

30

15. Verfahren zur Herstellung von EPDM, dadurch gekennzeichnet, daß die Copolymerisation in einem Reaktor gemäß den Ansprüchen 1 bis 10 durchgeführt wird.

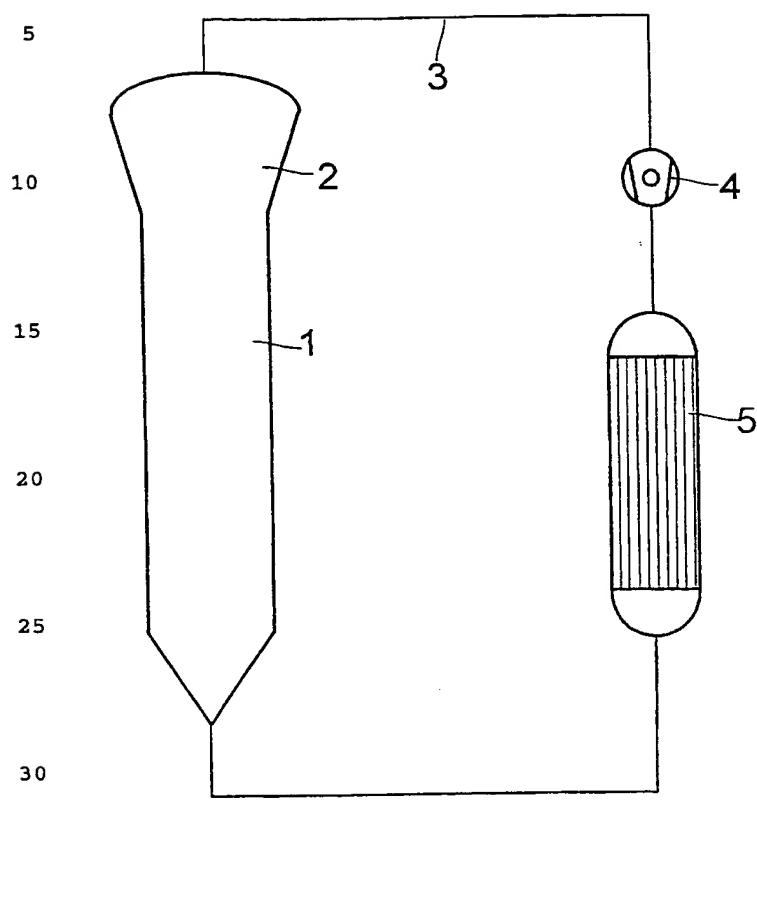
35

40

45

C

C



35

40

45

6

4